

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-226722

(P2002-226722A)

(43) 公開日 平成14年8月14日 (2002.8.14)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
C 0 9 B 57/00		C 0 9 B 57/00	R 3 K 0 0 7
C 0 7 C 253/30		C 0 7 C 253/30	4 H 0 0 6
255/52		255/52	4 H 0 5 0
255/58		255/58	4 H 0 5 6
C 0 7 F 9/40		C 0 7 F 9/40	D
審査請求 未請求 請求項の数20 O L (全 37 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2001-21006 (P2001-21006)

(22) 出願日 平成13年1月30日 (2001.1.30)

(71) 出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72) 発明者 市村 眞理

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内

(72) 発明者 石橋 義

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内

(74) 代理人 100076059

弁理士 逢坂 宏

最終頁に続く

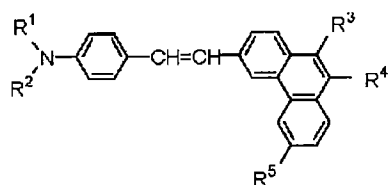
(54) 【発明の名称】 アミノスチリルフェナントレン化合物及びその合成中間体並びにこれらの製造方法

(57) 【要約】

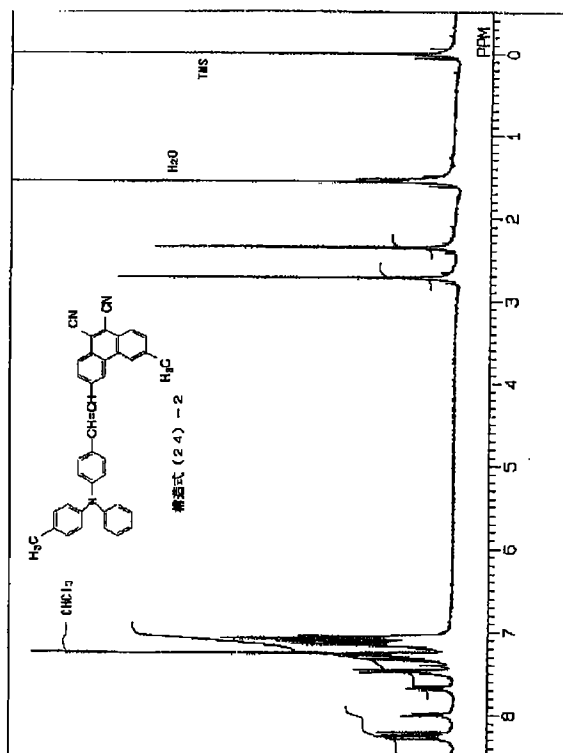
【課題】 安定かつ発光輝度の大きい赤色発光を示す有機発光材料とその製造方法を提供すること。

【解決手段】 例えば下記一般式 [I] で表されるアミノスチリルフェナントレン化合物。これを、対応する4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドとホスホン酸エステル又はホスホニウムとの縮合によって製造する。

【化101】 一般式 [I] :



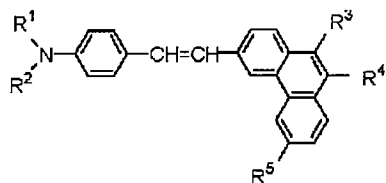
[但し、前記一般式 [I] において、R<sup>2</sup>は無置換のアリール基であり、R<sup>1</sup>は種々の置換基を有していてもよいアリール基、R<sup>3</sup>~R<sup>5</sup>は水素原子、シアノ基、炭化水素基などである。]



【特許請求の範囲】

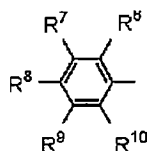
【請求項 1】 下記一般式 [I]、[II]、[III]、[IV] 又は [V] で示されるアミノスチリルフェナントレン化合物。

【化 1】 一般式 [I]：



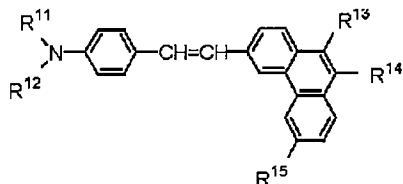
〔但し、前記一般式 [I] において、R<sup>2</sup>は無置換のアリール基であり、R<sup>1</sup>は下記一般式 (1) で表わされるアリール基であり、

【化 2】 一般式 (1)：



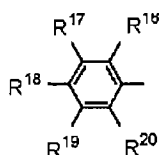
〔但し、前記一般式 (1) において、R<sup>6</sup>、R<sup>7</sup>、R<sup>8</sup>、R<sup>9</sup>及びR<sup>10</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、R<sup>5</sup>は水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。〕

【化 3】 一般式 [II]：



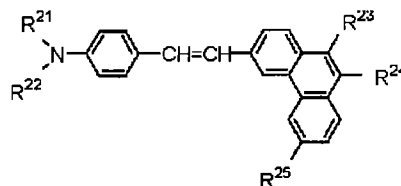
〔但し、前記一般式 [II] において、R<sup>11</sup>及びR<sup>12</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、下記一般式 (2) で表わされるアリール基であり、

【化 4】 一般式 (2)：



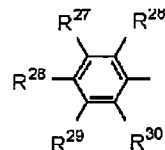
〔但し、前記一般式 (2) において、R<sup>16</sup>、R<sup>17</sup>、R<sup>18</sup>、R<sup>19</sup>及びR<sup>20</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、R<sup>15</sup>は水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。〕

【化 5】 一般式 [III]：



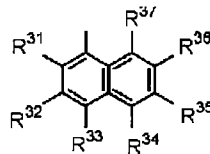
〔但し、前記一般式 [III] において、R<sup>21</sup>は下記一般式 (3) で表わされるアリール基であり

【化 6】 一般式 (3)：



〔但し、前記一般式 (3) において、R<sup>26</sup>、R<sup>27</sup>、R<sup>28</sup>、R<sup>29</sup>及びR<sup>30</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数 1 以上の炭化水素オキシ基、炭素数 1 以上の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、R<sup>22</sup>は下記一般式 (4) で表わされるアリール基であり

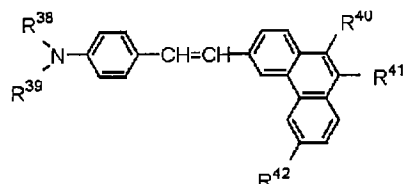
【化 7】 一般式 (4)：



〔但し、前記一般式 (4) において、R<sup>31</sup>、R<sup>32</sup>、R<sup>33</sup>、R<sup>34</sup>、R<sup>35</sup>、R<sup>36</sup>、及びR<sup>37</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、ト

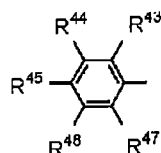
素原子である。）、 $R^{23}$ 及び $R^{24}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{25}$ は水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【化8】一般式 [IV] :



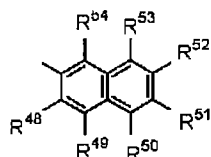
[但し、前記一般式 [IV] において、 $R^{38}$ は下記一般式 (5) で表わされるアリール基であり

【化9】一般式 (5) :



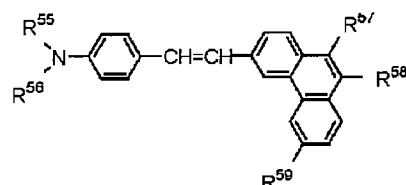
(但し、前記一般式 (5) において、 $R^{43}$ 、 $R^{44}$ 、 $R^{45}$ 、 $R^{46}$ 及び $R^{47}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、 $R^{39}$ は下記一般式 (6) で表わされるアリール基であり

【化10】一般式 (6) :



(但し、前記一般式 (6) において、 $R^{48}$ 、 $R^{49}$ 、 $R^{50}$ 、 $R^{51}$ 、 $R^{52}$ 、及び $R^{53}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭化水素オキシ基、炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、 $R^{40}$ 及び $R^{41}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{42}$ は水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有

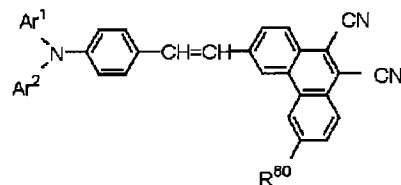
【化11】一般式 [V] :



[但し、前記一般式 [V] において、 $R^{55}$ 及び $R^{56}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基であり、 $R^{57}$ 及び $R^{58}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{59}$ は水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

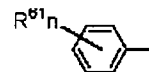
【請求項2】 下記一般式 (7) で表わされる、請求項1に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物。

【化12】一般式 (7) :

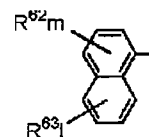


[但し、前記一般式 (7) において、 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の若しくは異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(13)、(14)、(15) 及び (16) で表わされるアリール基から選ばれた基であり

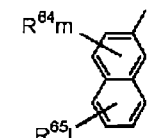
【化13】一般式 (8) :



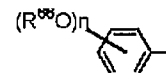
一般式 (9) :

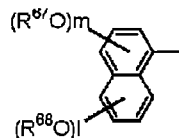


一般式 (10) :

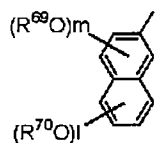


一般式 (11) :

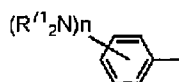




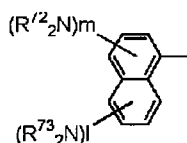
一般式 (13) :



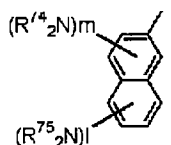
一般式 (14) :



一般式 (15) :



一般式 (16) :

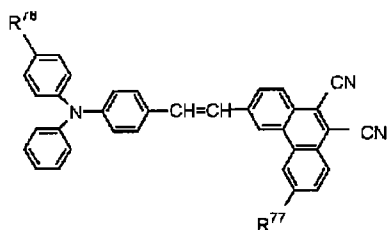


(但し、前記一般式 (8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(13)、(14)、(15) 及び (16) において、 $R^{61}$ 、 $R^{62}$ 、 $R^{63}$ 、 $R^{64}$ 、 $R^{65}$ 、 $R^{66}$ 、 $R^{67}$ 、 $R^{68}$ 、 $R^{69}$ 、 $R^{70}$ 、 $R^{71}$ 、 $R^{72}$ 、 $R^{73}$ 、 $R^{74}$  及び  $R^{75}$  は互いに同一の若しくは異なる炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基であり、 $n$  は 0～5 の整数であり、 $m$  は 0～3 の整数であり、 $l$  は 0～3 の整数である。) 、 $R^{60}$  は水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【請求項 3】 前記  $R^{61}$ 、 $R^{62}$ 、 $R^{63}$ 、 $R^{64}$ 、 $R^{65}$ 、 $R^{66}$ 、 $R^{67}$ 、 $R^{68}$ 、 $R^{69}$ 、 $R^{70}$ 、 $R^{71}$ 、 $R^{72}$ 、 $R^{73}$ 、 $R^{74}$  及び  $R^{75}$  の炭化水素基を形成する炭素数が 1～6 である、請求項 2 に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物。

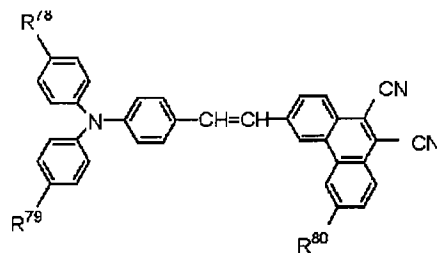
【請求項 4】 下記一般式 (17)、(18)、(19)、(20)、(21)、(22) 又は (23) で表わされる、請求項 2 に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物。

【化 14】 一般式 (17) :



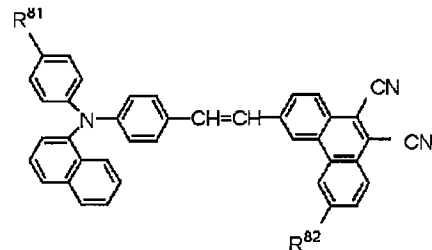
～6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{77}$  は水素原子、炭素数 1～6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化 15】 一般式 (18) :



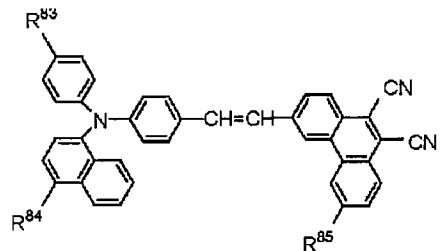
(但し、前記一般式 (18) において、 $R^{78}$  及び  $R^{79}$  は炭素数 1～6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{80}$  は水素原子、炭素数 1～6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化 16】 一般式 (19) :



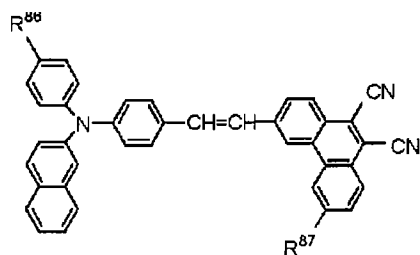
(但し、前記一般式 (19) において、 $R^{81}$  は炭素数 1～6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{82}$  は水素原子、炭素数 1～6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化 17】 一般式 (20) :



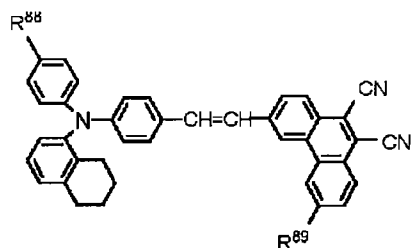
(但し、前記一般式 (20) において、 $R^{83}$  及び  $R^{84}$  は炭素数 1～6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{85}$  は水素原子、炭素数 1～6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化 18】 一般式 (21) :



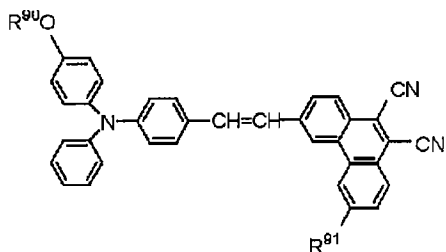
(但し、前記一般式(2 1)において、R<sup>86</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>87</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化1 9】一般式(2 2)：



(但し、前記一般式(2 2)において、R<sup>88</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>89</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

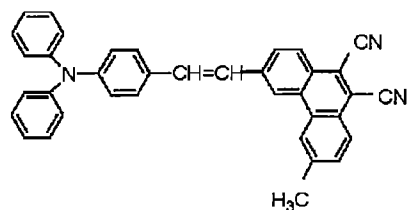
【化2 0】一般式(2 3)：



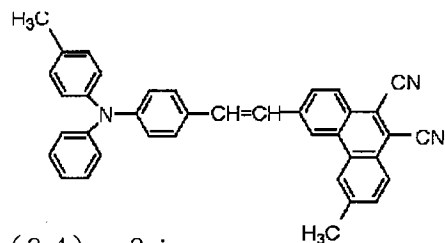
(但し、前記一般式(2 3)において、R<sup>90</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>91</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【請求項5】 下記構造式(2 4)－1、(2 4)－2、(2 4)－3、(2 4)－4、(2 4)－5、(2 4)－6、(2 4)－7、(2 4)－8、(2 4)－9、(2 4)－10、(2 4)－11、(2 4)－12及び(2 4)－13で表わされる、請求項2に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物。

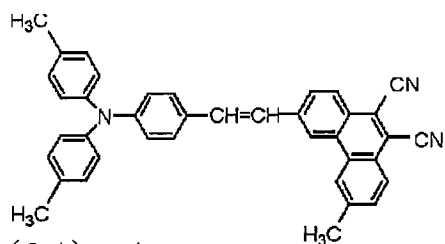
【化2 1】構造式(2 4)－1：



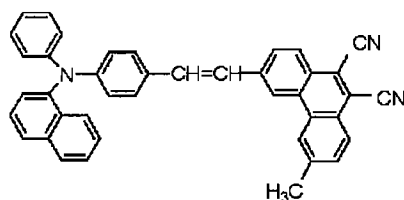
構造式(2 4)－2：



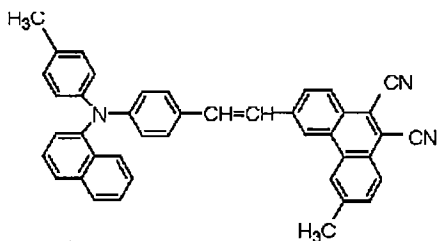
構造式(2 4)－3：



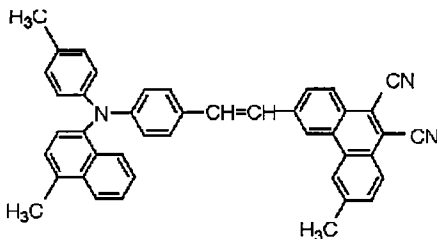
構造式(2 4)－4：



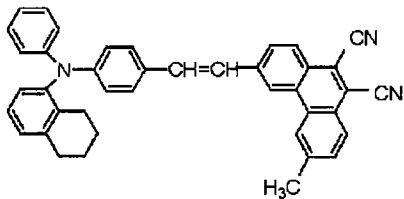
構造式(2 4)－5：



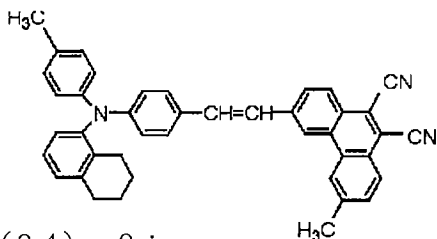
構造式(2 4)－6：



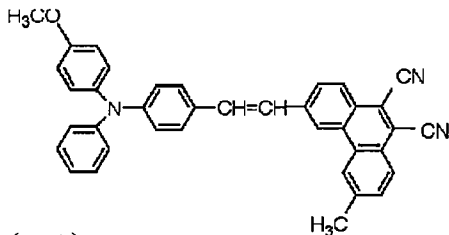
構造式(2 4)－7：



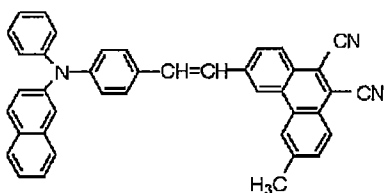
構造式(2 4)－8：



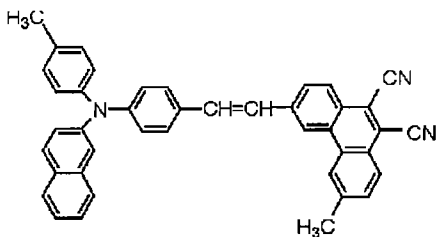
構造式 (24) - 9 :



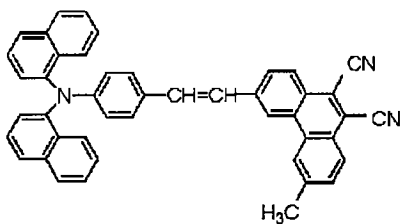
構造式 (24) - 10 :



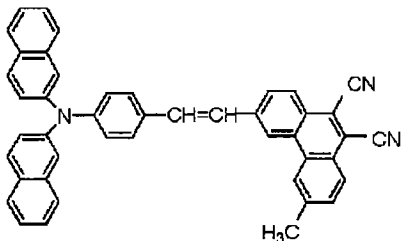
構造式 (24) - 11 :



構造式 (24) - 12 :

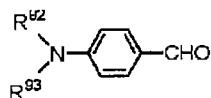


構造式 (24) - 13 :



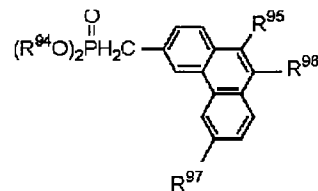
【請求項6】 下記一般式 [VI] で表わされる 4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドと；下記一般式 [VII] で表わされるホスホン酸エステル及び／又は下記一般式 [VIII] で表わされるホスホニウムと；を縮合させることによって、下記一般式 [I]、[II]、[III]、[IV]又は[V]で表わされるアミノスチリルフェナントレン化合物を得る、アミノスチリルフェ

【化22】一般式 [VI] :

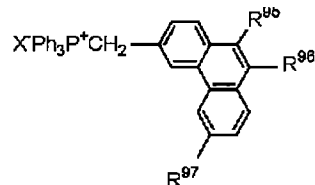


(但し、前記一般式 [VI] において、R<sup>92</sup>及びR<sup>93</sup>はそれぞれ、下記R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>11</sup>、R<sup>12</sup>、R<sup>21</sup>、R<sup>22</sup>、R<sup>38</sup>、R<sup>39</sup>、R<sup>55</sup>又はR<sup>56</sup>に相当するアリール基である。)

【化23】一般式 [VII] :

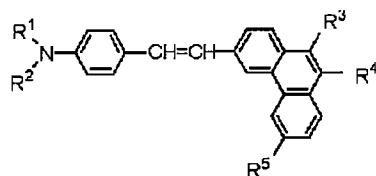


一般式 [VIII] :



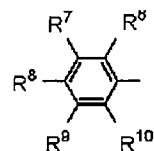
(但し、前記一般式 [VII] および [VIII] において、R<sup>94</sup>は炭化水素基であり、R<sup>95</sup>及びR<sup>96</sup>はそれぞれ、下記R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>13</sup>、R<sup>14</sup>、R<sup>23</sup>、R<sup>24</sup>、R<sup>40</sup>、R<sup>41</sup>、R<sup>57</sup>又はR<sup>58</sup>に相当する基であり、R<sup>97</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、Xはハロゲン原子である。)

【化24】一般式 [I] :



(但し、前記一般式 [I] において、R<sup>2</sup>は無置換のアリール基であり、R<sup>1</sup>は下記一般式 (1) で表わされるアリール基であり、

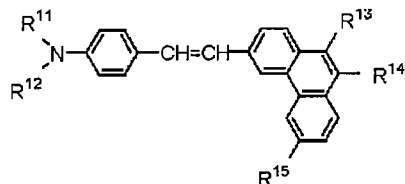
【化25】一般式 (1) :



(但し、前記一般式 (1) において、R<sup>6</sup>、R<sup>7</sup>、R<sup>8</sup>、R<sup>9</sup>及びR<sup>10</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数1以上の飽和若し

又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、  
R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、  
それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ  
基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残  
りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロ  
ゲン原子であり、R<sup>5</sup>は水素原子、炭素数1以上の飽和  
若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよ  
いアリール基である。]

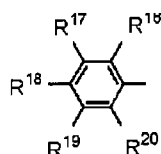
【化26】一般式 [II] :



[但し、前記一般式 [II] において、R<sup>11</sup>及びR<sup>12</sup>は互  
いに同一の若しくは異なる基であって、下記一般式

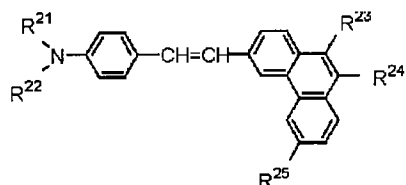
(2) で表わされるアリール基であり

【化27】一般式 (2) :



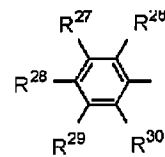
(但し、前記一般式 (2) において、R<sup>16</sup>、R<sup>17</sup>、  
R<sup>18</sup>、R<sup>19</sup>及びR<sup>20</sup>は互いに同一の若しくは異なる基で  
あって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽  
和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の飽和若  
しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数1以上の飽和  
若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチ  
ル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。  
)、R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>は互いに同一の若しくは異なる基  
であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ  
基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子  
であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチ  
ル基又はハロゲン原子であり、R<sup>15</sup>は水素原子、炭素数1  
以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を  
有してもよいアリール基である。]

【化28】一般式 [III] :



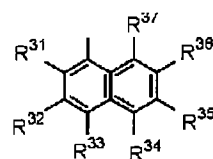
[但し、前記一般式 [III] において、R<sup>21</sup>は下記一般  
式 (3) で表わされるアリール基であり

【化29】一般式 (3) :



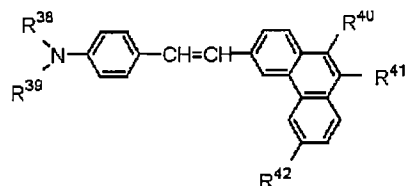
(但し、前記一般式 (3) において、R<sup>26</sup>、R<sup>27</sup>、  
R<sup>28</sup>、R<sup>29</sup>及びR<sup>30</sup>は互いに同一の若しくは異なる基で  
あって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽  
和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の炭化水  
素オキシ基、炭素数1以上の炭化水素アミノ基、トリフ  
ルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原  
子である。)、R<sup>22</sup>は下記一般式 (4) で表わされるア  
リール基であり

【化30】一般式 (4) :



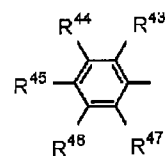
(但し、前記一般式 (4) において、R<sup>31</sup>、R<sup>32</sup>、  
R<sup>33</sup>、R<sup>34</sup>、R<sup>35</sup>、R<sup>36</sup>、及びR<sup>37</sup>は互いに同一の若し  
くは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭  
素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数  
1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素  
数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、ト  
リフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水  
素原子である。)、R<sup>23</sup>及びR<sup>24</sup>は互いに同一の若しく  
は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原  
子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハ  
ロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフ  
ルオロメチル基又はハロゲン原子であり、R<sup>25</sup>は水素原  
子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、  
又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【化31】一般式 [IV] :



[但し、前記一般式 [IV] において、R<sup>38</sup>は下記一般式  
(5) で表わされるアリール基であり

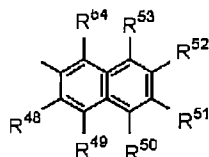
【化32】一般式 (5) :



(但し、前記一般式 (5) において、R<sup>43</sup>、R<sup>44</sup>、

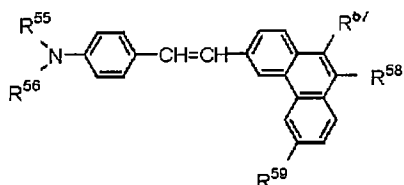
あって、少なくとも一つが水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、 $R^{39}$ は下記一般式(6)で表わされるアリール基であり

【化33】一般式(6)：



(但し、前記一般式(6)において、 $R^{48}$ 、 $R^{49}$ 、 $R^{50}$ 、 $R^{51}$ 、 $R^{52}$ 、 $R^{53}$ 、及び $R^{54}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭化水素オキシ基、炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、 $R^{40}$ 及び $R^{41}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{42}$ は水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【化34】一般式[V]：



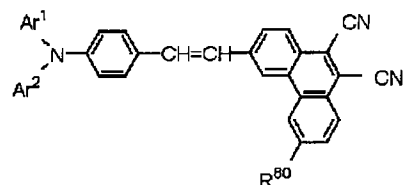
[但し、前記一般式[V]において、 $R^{55}$ 及び $R^{56}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基であり、 $R^{57}$ 及び $R^{58}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{59}$ は水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【請求項7】 前記縮合をウィットティヒホーナー(Wittig-Horner)反応又はウィットティヒ(Wittig)反応によって行い、前記ホスホン酸エステル及び/又は前記ホスホニウムを溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズ

スチリルフェナントレン化合物の製造方法。

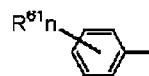
【請求項8】 下記一般式(7)で表わされるアミノスチリルフェナントレン化合物を得るに際し

【化35】一般式(7)：

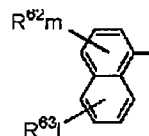


[但し、前記一般式(7)において、 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の若しくは異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(13)、(14)、(15)及び(16)で表わされるアリール基から選ばれた基であり

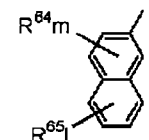
【化36】一般式(8)：



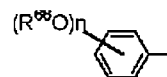
一般式(9)：



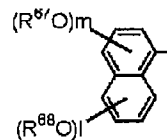
一般式(10)：



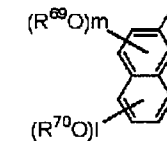
一般式(11)：



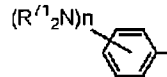
一般式(12)：



一般式(13)：

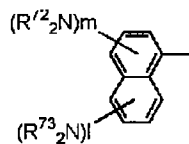


一般式(14)：

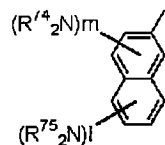


一般式(15)：



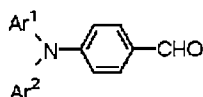


一般式 (16) :

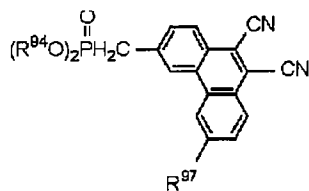


(但し、前記一般式 (8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(13)、(14)、(15) 及び (16) において、 $R^{61}$ 、 $R^{62}$ 、 $R^{63}$ 、 $R^{64}$ 、 $R^{65}$ 、 $R^{66}$ 、 $R^{67}$ 、 $R^{68}$ 、 $R^{69}$ 、 $R^{70}$ 、 $R^{71}$ 、 $R^{72}$ 、 $R^{73}$ 、 $R^{74}$  及び  $R^{75}$  は互いに同一の若しくは異なる炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基であり、 $n$  は 0~5 の整数であり、 $m$  は 0~3 の整数であり、 $l$  は 0~3 の整数である。)、 $R^{60}$  は水素原子、炭素数 1 以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]、下記一般式 (25) で表わされる 4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドと；下記一般式 (26) で表わされるホスホン酸エステル及び／又は下記一般式 (27) で表わされるホスホニウムと；を縮合させる、請求項 6 に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物の製造方法。

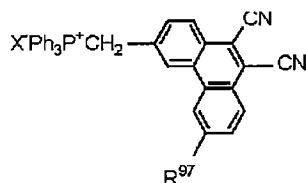
【化 37】一般式 (25) :



一般式 (26) :



一般式 (27) :



(但し、前記一般式 (25)、(26) 及び (27) において、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 、 $R^{94}$ 、 $R^{97}$  及び  $X$  は前記したものと同一である。)

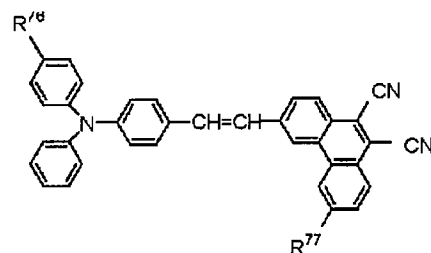
【請求項 9】 前記  $R^{94}$  を炭素数 1~4 の飽和炭化水素基とする、請求項 6 に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物の製造方法。

【請求項 10】 前記  $R^{61}$ 、 $R^{62}$ 、 $R^{63}$ 、 $R^{64}$ 、 $R^{65}$ 、

$R^{74}$  及び  $R^{75}$  の炭化水素を形成する炭素数を 1~6 とする、請求項 7 に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物の製造方法。

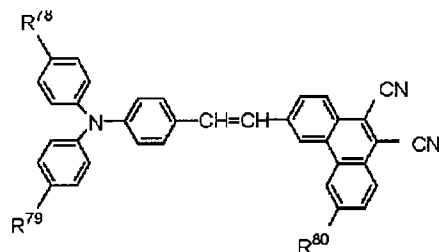
【請求項 11】 下記一般式 (17)、(18)、(19)、(20)、(21)、(22) 又は (23) で表わされるアミノスチリルフェナントレン化合物を得る、請求項 7 に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物の製造方法。

【化 38】一般式 (17) :



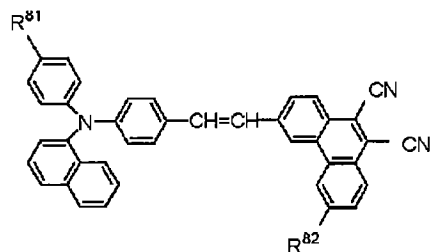
(但し、前記一般式 (17) において、 $R^{76}$  は炭素数 1~6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{77}$  は水素原子、炭素数 1~6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化 39】一般式 (18) :



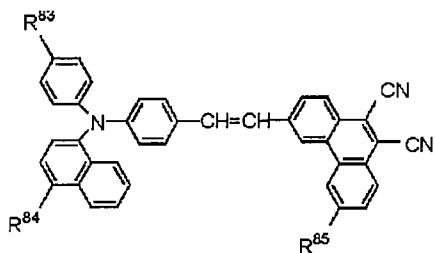
(但し、前記一般式 (18) において、 $R^{78}$  及び  $R^{79}$  は炭素数 1~6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{80}$  は水素原子、炭素数 1~6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化 40】一般式 (19) :



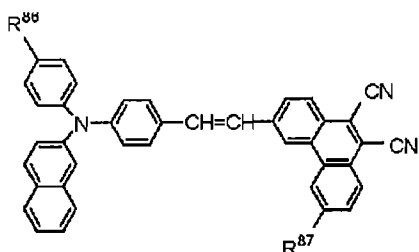
(但し、前記一般式 (19) において、 $R^{81}$  は炭素数 1~6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{82}$  は水素原子、炭素数 1~6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化 41】一般式 (20) :



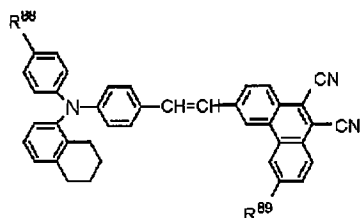
(但し、前記一般式(20)において、 $R^{83}$ 及び $R^{84}$ は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{85}$ は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化42】一般式(21)：



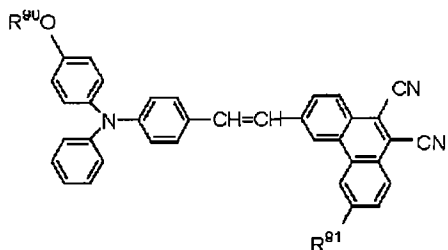
(但し、前記一般式(21)において、 $R^{86}$ は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{87}$ は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化43】一般式(22)：



(但し、前記一般式(22)において、 $R^{88}$ は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{89}$ は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

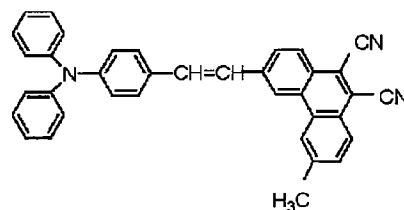
【化44】一般式(23)：



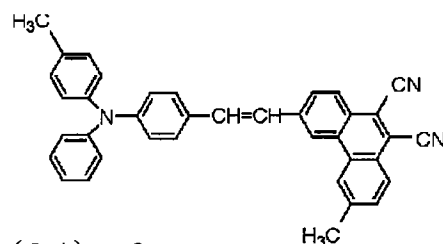
(但し、前記一般式(23)において、 $R^{90}$ は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、 $R^{91}$ は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換

【請求項12】 下記構造式(24)-1、(24)-2、(24)-3、(24)-4、(24)-5、(24)-6、(24)-7、(24)-8、(24)-9、(24)-10、(24)-11、(24)-12及び(24)-13で表わされるアミノスチリルフェナントレン化合物を得る、請求項7に記載したアミノスチリルフェナントレン化合物の製造方法。

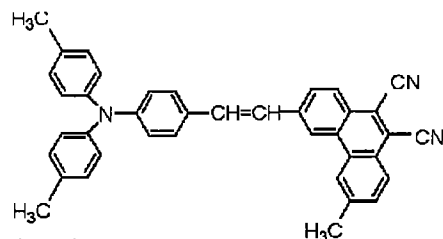
【化45】構造式(24)-1：



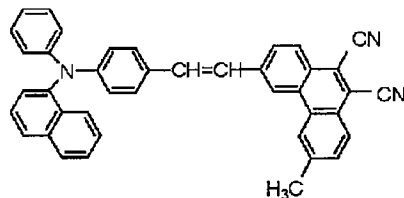
構造式(24)-2：



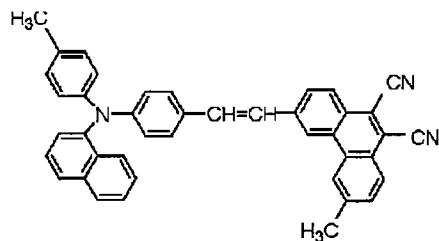
構造式(24)-3：



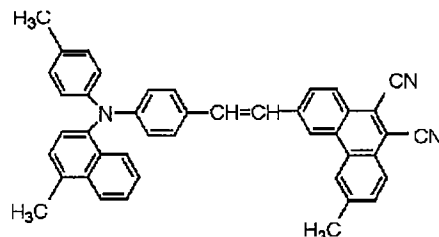
構造式(24)-4：

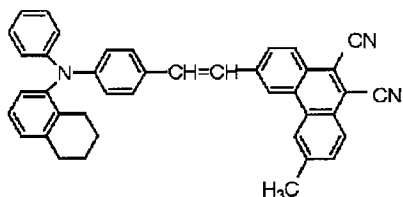


構造式(24)-5：

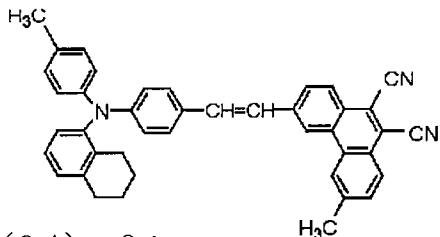


構造式(24)-6：

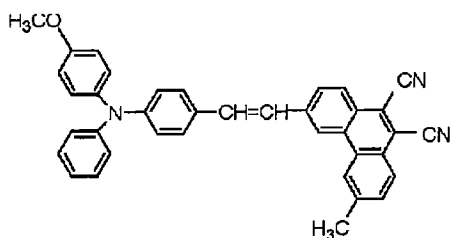




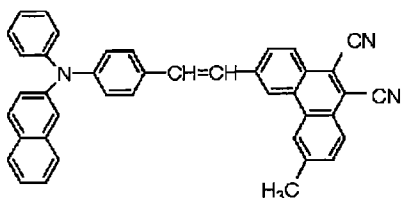
構造式 (24) - 8 :



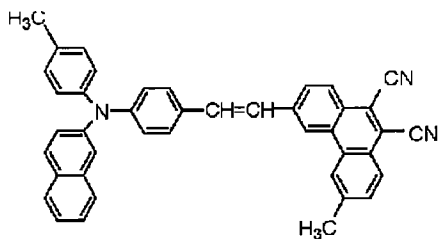
構造式 (24) - 9 :



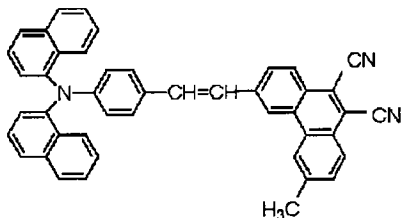
構造式 (24) - 10 :



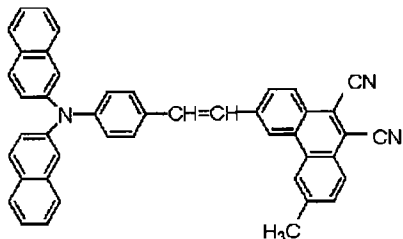
構造式 (24) - 11 :



構造式 (24) - 12 :

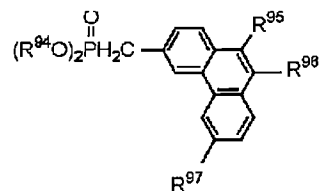


構造式 (24) - 13 :

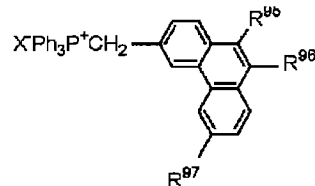


わされるホスホン酸エステル又はホスホニウム。

【化46】一般式 [VII] :



一般式 [VIII] :

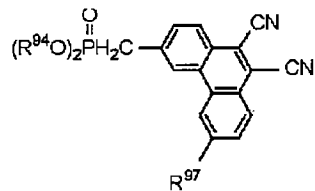


(但し、前記一般式 [VII] 及び [VIII] において、R<sup>94</sup>は炭化水素基であり、R<sup>95</sup>及びR<sup>96</sup>はそれぞれ、前記R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>13</sup>、R<sup>14</sup>、R<sup>23</sup>、R<sup>24</sup>、R<sup>40</sup>、R<sup>41</sup>、R<sup>57</sup>又はR<sup>58</sup>に相当する基であり、R<sup>97</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、Xはハロゲン原子である。)

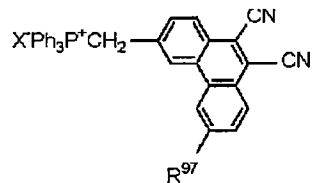
【請求項14】 前記R<sup>94</sup>が炭素数1～4の飽和炭化水素基である、請求項13に記載したホスホン酸エステル又はホスホニウム。

【請求項15】 下記一般式 (26) 及び (27) で表わされる、請求項13に記載したホスホン酸エステル又はホスホニウム。

【化47】一般式 (26) :



一般式 (27) :

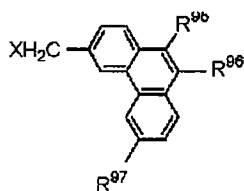


(但し、前記一般式 (26) 及び (27) において、R<sup>94</sup>、R<sup>97</sup>及びXは前記したものと同一である。)

【請求項16】 下記一般式 [IX] で表わされるハロゲン化アリール化合物と、下記一般式 [X] で表わされる亜リン酸トリアルキル又はトリフェニルホスフィン (PPh<sub>3</sub>) とを反応させることによって、下記一般式 [VI] 又は [VIII] で表わされるホスホン酸エステル又は

ウムの製造方法。

【化 4 8】一般式 [IX] :

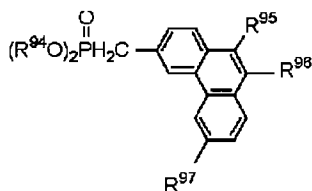


一般式 [X] :

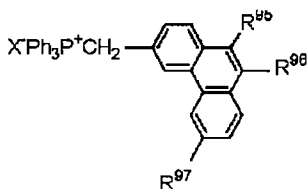
$P(OR^{94})_3$

(但し、前記一般式 [X] において、 $R^{94}$ は炭化水素基である。)

【化 4 9】一般式 [VII] :



一般式 [VIII] :

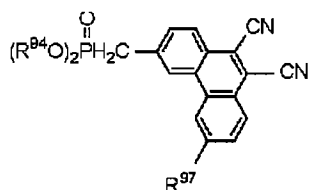


(但し、前記一般式 [VII] 及び [VIII] において、 $R^{94}$ 、 $R^{95}$ 、 $R^{96}$ 、 $R^{97}$ 及びXは前記したものと同一である。)

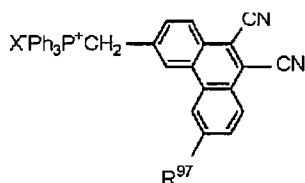
【請求項 1 7】 前記 $R^{94}$ を炭素数 1 ~ 4 の飽和炭化水素基とする、請求項 1 6 に記載したホスホン酸エステル又はホスホニウムの製造方法。

【請求項 1 8】 下記一般式 (2 6) 又は (2 7) で表わされるホスホン酸エステル又はホスホニウムを得る、請求項 1 6 に記載したホスホン酸エステル又はホスホニウムの製造方法。

【化 5 0】一般式 (2 6) :



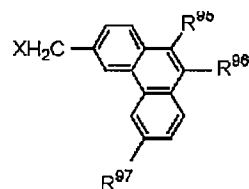
一般式 (2 7) :



(但し、前記一般式 (2 6) 及び (2 7) において、 $R^{94}$ 、 $R^{97}$ 及びXは前記したものと同一である。)

【請求項 1 9】 下記一般式 [IX] で表わされるハロゲン化アリール化合物。

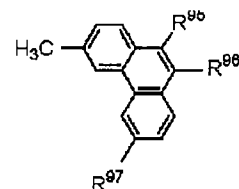
【化 5 1】一般式 [IX] :



(但し、一般式 [IX] において、 $R^{95}$ 及び $R^{96}$ はそれぞれ同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{97}$ は水素原子、炭素数 1 ~ 6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、Xはハロゲン原子である。)

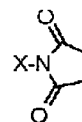
【請求項 2 0】 下記一般式 [XI] で表わされるフェナントレン化合物と、一般式 [XII] で表わされるN-ハロゲン化スクシンイミドとを反応させることによって、下記一般式 [IX] で表わされるハロゲン化アリール化合物を得る、ハロゲン化アリール化合物の製造方法。

【化 5 2】一般式 [XI] :



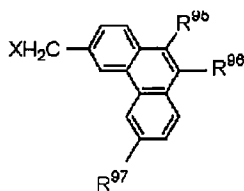
(但し、一般式 [XI] において、 $R^{95}$ 及び $R^{96}$ はそれぞれ同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{97}$ は水素原子、炭素数 1 ~ 6 の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【化 5 3】一般式 [XII] :



(但し、前記一般式 [XII] において、Xはハロゲン原子である。)

【化 5 4】一般式 [IX] :



# 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、赤色発光を呈する有機発光材料として好適なアミノスチリルフェナントレン化合物及びその合成中間体、並びにこれらの製造方法に関するものである。

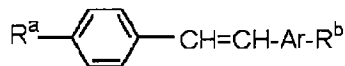
## 【0002】

【従来の技術】自発光であって、応答速度が高速であり、視野角依存性の無いフラットパネルディスプレイの1候補として、有機電界発光素子（EL素子）等が近日注目されており、その構成材料として、有機発光材料への関心が高まっている。有機発光材料の第一の利点は、分子設計によって材料の光学的な性質をある程度コントロールできるところにあり、これによって、赤、青、緑の3原色発光をすべてそれぞれの発光材料で作成したフルカラー有機発光素子の実現が可能である。

【0003】下記一般式〔A〕で示されるスチリル化合物は、導入される置換基に依存して、可視部領域に青～赤の強い発光を呈することから、有機電界発光素子材料に限らず、さまざまな用途に利用可能である。さらに、これら材料は昇華性であり、真空蒸着のプロセスによって、均一なアモルファス膜を形成しうる利点がある。今日では分子軌道計算等により、材料の光学的な性質がある程度までは予想可能であるが、実際には、要求される材料を高効率に製造する技術が産業上最も重要であることは、言うまでもない。

## 【0004】

【化55】一般式〔A〕：



（但し、前記一般式〔A〕において、Arは置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>a</sup>及びR<sup>b</sup>はそれぞれ、水素原子、飽和若しくは不飽和のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、シアノ基、ハロゲン原子、ニトロ基、炭化水素オキシ基、炭化水素アミノ基又はトリフルオロメチル基を示し、これらは同一であっても異なってもよい。）

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】これまで、有機発光材料として前記一般式〔A〕に属する多くの化合物が製造されてきたが、これらの材料の発光は特開平1-245087、特開平4-275268、特開平5-121168（以上、出光興産（株））、特開平7-18864

（株））等々に示されているように、多くが青～緑である。これまで橙色～赤色の発光を呈するものはわずかに報告されているのみであり[電子情報通信学会、技術研究報告書、有機エレクトロニクス、17、7（1992）、Inorganic and Organic Electroluminescence 96 Berlin, 101（1996）等]、またその高効率な製造法も確立されていなかった。

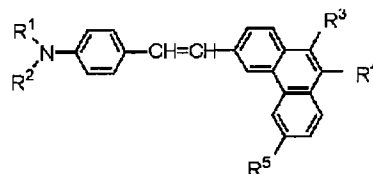
【0006】本発明の目的は、上記のような現状に鑑み、強い発光を呈する赤色の有機発光材料として好適な化合物及びその合成中間体と、これらを高効率に製造する方法を提供することにある。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、一般式〔I〕、〔I'〕、〔III〕、〔IV〕又は〔V〕で表されるアミノスチリルフェナントレン化合物が強い発光を呈し、赤色の発光材料となりうることを見出し、かつその一般的かつ高効率な製造方法を確立し、本発明に到達したものである。

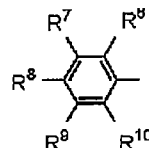
【0008】即ち、本発明はまず、下記一般式〔I〕、〔I'〕、〔III〕、〔IV〕、又は〔V〕で表されるアミノスチリルフェナントレン化合物（以下、本発明の化合物と称する。）に係るものである。

【化56】一般式〔I〕：



〔但し、前記一般式〔I〕において、R<sup>2</sup>は無置換のアリール基であり、R<sup>1</sup>は下記一般式（1）で表わされるアリール基であり、

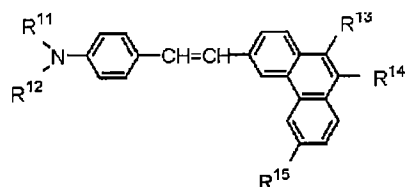
【化57】一般式（1）：



（但し、前記一般式（1）において、R<sup>6</sup>、R<sup>7</sup>、R<sup>8</sup>、R<sup>9</sup>及びR<sup>10</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。）、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロ

若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

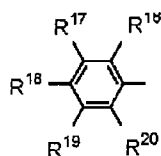
【化58】一般式 [II] :



[但し、前記一般式 [II] において、R<sup>11</sup>及びR<sup>12</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、下記一般式

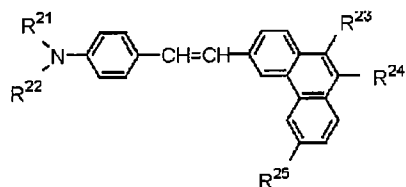
(2) で表わされるアリール基であり

【化59】一般式 (2) :



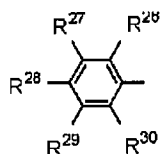
(但し、前記一般式 (2) において、R<sup>16</sup>、R<sup>17</sup>、R<sup>18</sup>、R<sup>19</sup>及びR<sup>20</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、R<sup>15</sup>は水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【化60】一般式 [III] :



[但し、前記一般式 [III] において、R<sup>21</sup>は下記一般式 (3) で表わされるアリール基であり

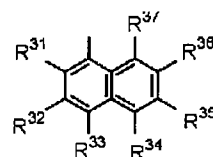
【化61】一般式 (3) :



(但し、前記一般式 (3) において、R<sup>26</sup>、R<sup>27</sup>、R<sup>28</sup>、R<sup>29</sup>及びR<sup>30</sup>は互いに同一の若しくは異なる基で

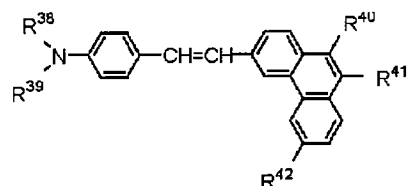
和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の炭化水素オキシ基、炭素数1以上の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、R<sup>22</sup>は下記一般式 (4) で表わされるアリール基であり

【化62】一般式 (4) :



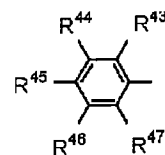
(但し、前記一般式 (4) において、R<sup>31</sup>、R<sup>32</sup>、R<sup>33</sup>、R<sup>34</sup>、R<sup>35</sup>、R<sup>36</sup>、及びR<sup>37</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、R<sup>23</sup>及びR<sup>24</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、R<sup>25</sup>は水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【化63】一般式 [IV] :

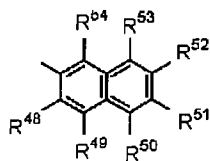


[但し、前記一般式 [IV] において、R<sup>38</sup>は下記一般式 (5) で表わされるアリール基であり

【化64】一般式 (5) :

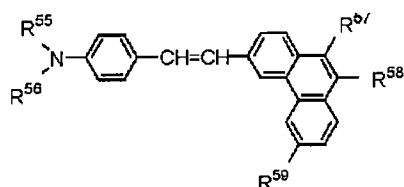


(但し、前記一般式 (5) において、R<sup>43</sup>、R<sup>44</sup>、R<sup>45</sup>、R<sup>46</sup>及びR<sup>47</sup>は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素オキシ基、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、R<sup>39</sup>は下記一般式 (6) で表わされるアリール基であり



(但し、前記一般式(6)において、 $R^{48}$ 、 $R^{49}$ 、 $R^{50}$ 、 $R^{51}$ 、 $R^{52}$ 、 $R^{53}$ 、及び $R^{54}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、炭化水素オキシ基、炭化水素アミノ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りが水素原子である。)、 $R^{40}$ 及び $R^{41}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{42}$ は水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【化66】一般式[V]：

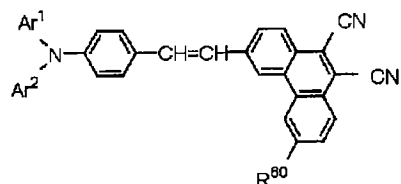


[但し、前記一般式[V]において、 $R^{55}$ 及び $R^{56}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、少なくとも一つが水素原子又は炭素数1以上の飽和若しくは不飽和の炭化水素基であり、 $R^{57}$ 及び $R^{58}$ は互いに同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、 $R^{59}$ は水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

【0009】本発明の化合物は、赤色発光を示す有機発光材料として有効に利用することができ、また、高い融点を有する化合物であり、電気的、熱的或いは化学的な安定性に優れている上、非晶質でガラス状態を用意に形成し得るので、蒸着等も行うことができる。

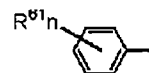
【0010】本発明の化合物は、下記一般式で表されるものが好ましい。

【化67】一般式(7)：

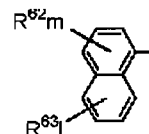


それぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の若しくは異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(13)、(14)、(15)及び(16)で表わされるアリール基から選ばれた基であり

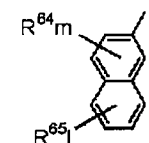
【化68】一般式(8)：



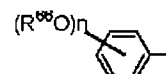
一般式(9)：



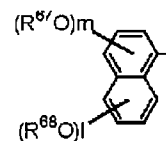
一般式(10)：



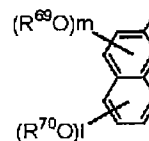
一般式(11)：



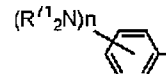
一般式(12)：



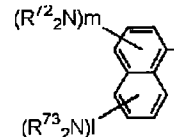
一般式(13)：



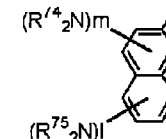
一般式(14)：



一般式(15)：



一般式(16)：

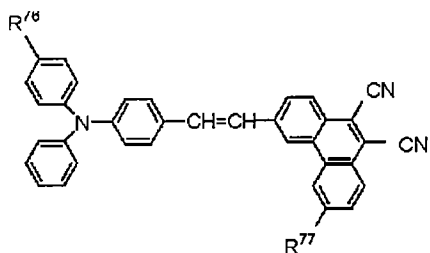


(但し、前記一般式(8)、(9)、(10)、(11)、(12)、(13)、(14)、(15)及び(16)において、 $R^{61}$ 、 $R^{62}$ 、 $R^{63}$ 、 $R^{64}$ 、 $R^{65}$ 、 $R$

及びR<sup>75</sup>は互いに同一の若しくは異なる炭素数1以上（好ましくは1～6）の飽和若しくは不飽和の炭化水素基であり、nは0～5の整数であり、mは0～3の整数であり、1は0～3の整数である。）R<sup>60</sup>は水素原子、炭素数1以上の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。]

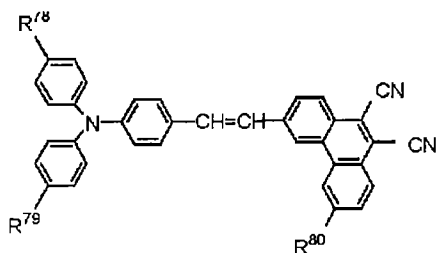
【0011】本発明の化合物は、より具体的には、下記一般式（17）、（18）、（19）、（20）、（21）、（22）又は（23）で表わされるものがよい。

【化69】一般式（17）：



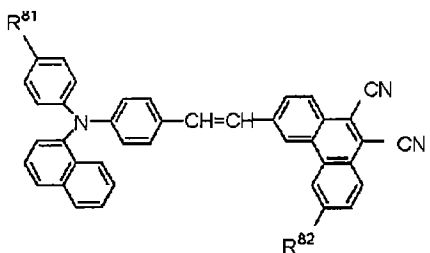
（但し、前記一般式（17）において、R<sup>76</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>77</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。）

【化70】一般式（18）：



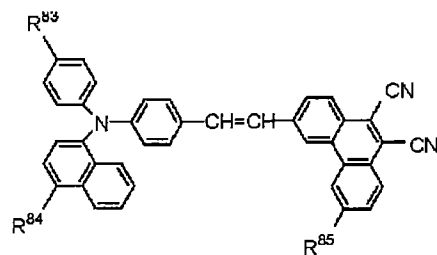
（但し、前記一般式（18）において、R<sup>78</sup>及びR<sup>79</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>80</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。）

【化71】一般式（19）：



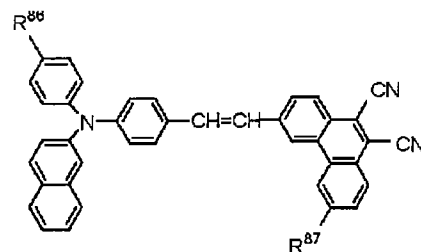
（但し、前記一般式（19）において、R<sup>81</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>82</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。）

【化72】一般式（20）：



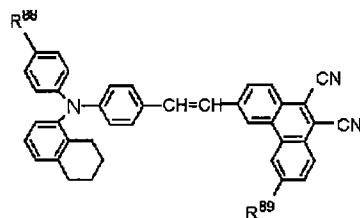
（但し、前記一般式（20）において、R<sup>83</sup>及びR<sup>84</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>85</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。）

【化73】一般式（21）：



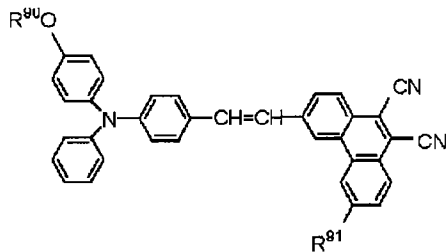
（但し、前記一般式（21）において、R<sup>86</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>87</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。）

【化74】一般式（22）：



（但し、前記一般式（22）において、R<sup>88</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>89</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。）

【化75】一般式（23）：

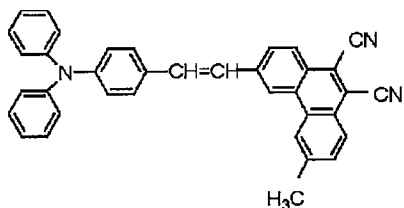


（但し、前記一般式（23）において、R<sup>90</sup>は炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、R<sup>91</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換

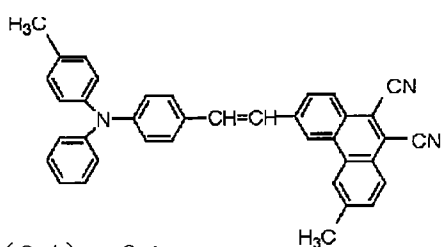


【0012】本発明の化合物は、下記構造式(24)－1、(24)－2、(24)－3、(24)－4、(24)－5、(24)－6、(24)－7、(24)－8、(24)－9、(24)－10、(24)－11、(24)－12及び(24)－13で表わされるものが具体的に例示される。

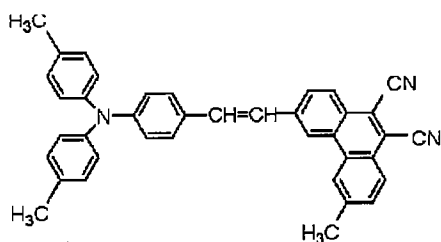
【化76】構造式(24)－1：



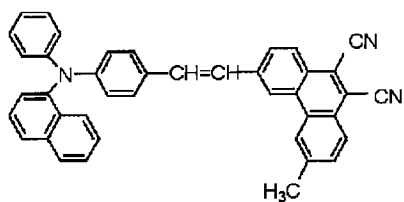
構造式(24)－2：



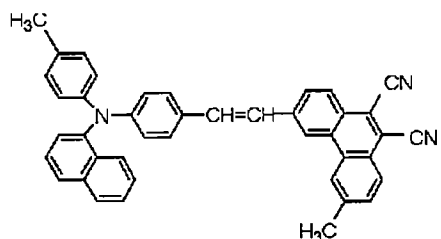
構造式(24)－3：



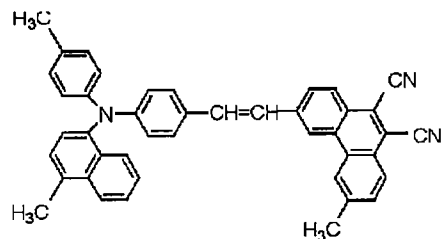
構造式(24)－4：



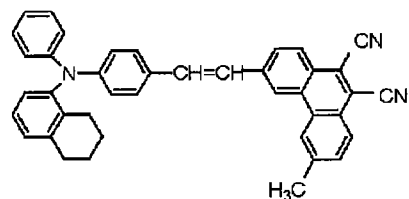
構造式(24)－5：



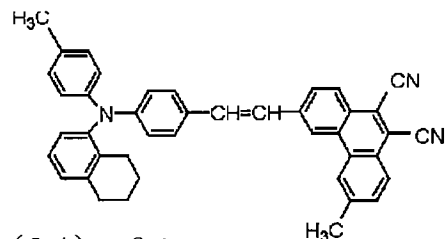
構造式(24)－6：



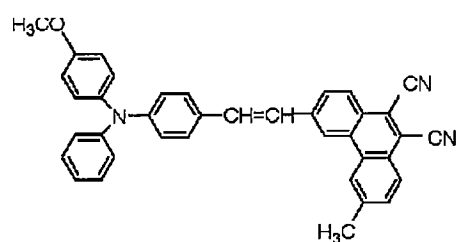
構造式(24)－7：



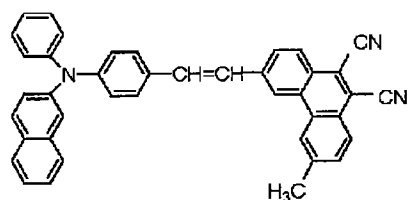
構造式(24)－8：



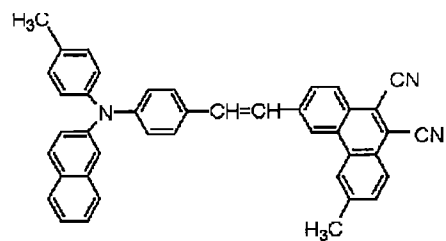
構造式(24)－9：



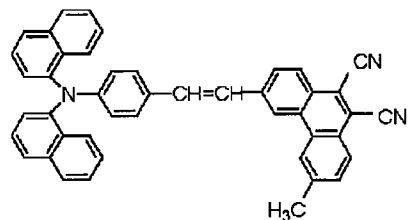
構造式(24)－10：



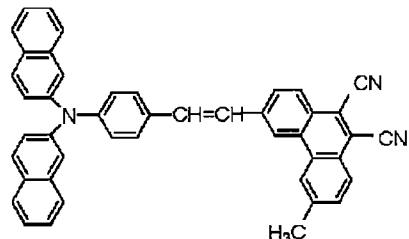
構造式(24)－11：



構造式(24)－12：

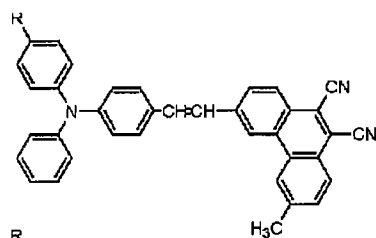


構造式(24)－13：

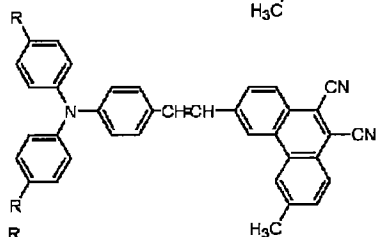


とができる。

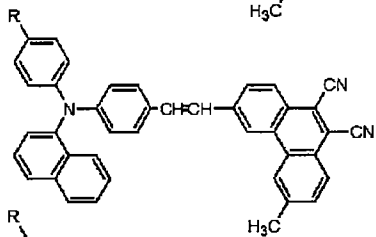
【化77】



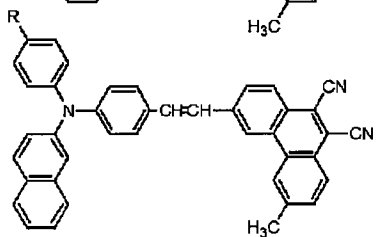
R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



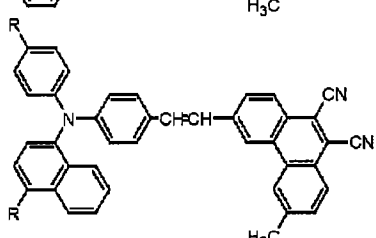
R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



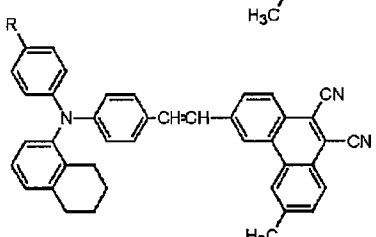
R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



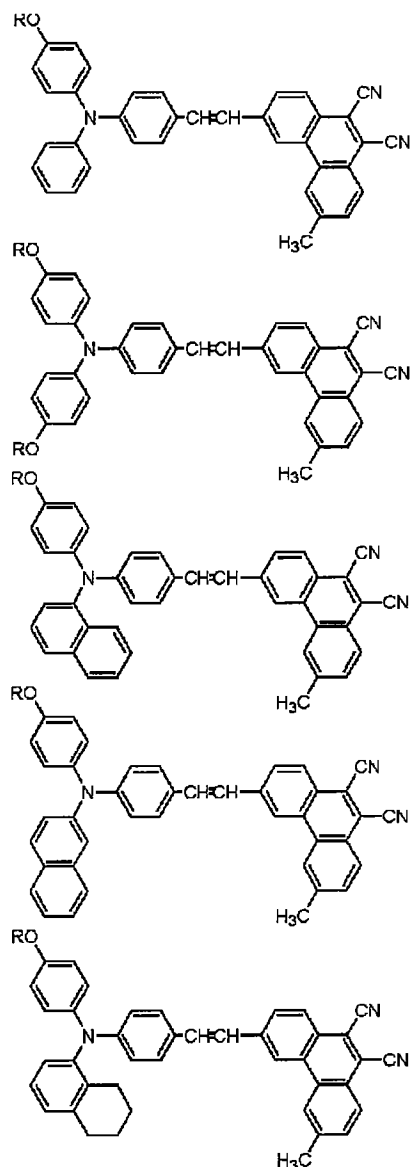
R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>

R=CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>

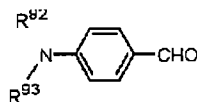
R=CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>

R=CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>

R=CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>

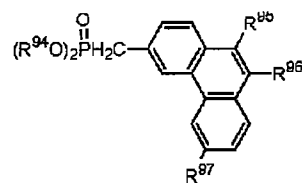
【0014】本発明はまた、本発明の化合物を高効率に製造する方法として、下記一般式 [VI] で表されるアミノベンズアルデヒドと；下記一般式 [VII] で表されるホスホン酸エステル及び／又は下記一般式 [VIII] で表されるホスホニウムと；を縮合させることによって、前記一般式 [I]、[II]、[III]、[IV] 又は [V] で示されるアミノスチリルフェナントレン化合物を得る、本発明の製造方法も提供するものである。

【化78】一般式 [VI]：

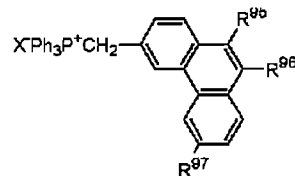


(但し、前記一般式 [VI] において、R<sup>92</sup>及びR<sup>93</sup>はそれぞれ、前記R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>11</sup>、R<sup>12</sup>、R<sup>21</sup>、R<sup>22</sup>、R<sup>38</sup>、R<sup>39</sup>、R<sup>55</sup>又はR<sup>56</sup>に相当するアリール基である。)

【化79】一般式 [VII]：



一般式 [VIII]：



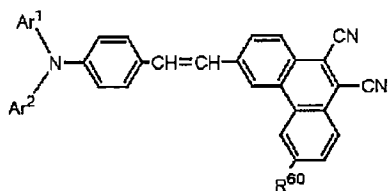
(但し、前記一般式 [VII] 及び [VIII] において、R<sup>94</sup>は炭化水素基（好ましくは炭素数1～4の飽和炭化水素基）であり、R<sup>95</sup>及びR<sup>96</sup>はそれぞれ、前記R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>13</sup>、R<sup>14</sup>、R<sup>23</sup>、R<sup>24</sup>、R<sup>40</sup>、R<sup>41</sup>、R<sup>57</sup>又はR<sup>58</sup>に相当する基であり、R<sup>97</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有

る。)

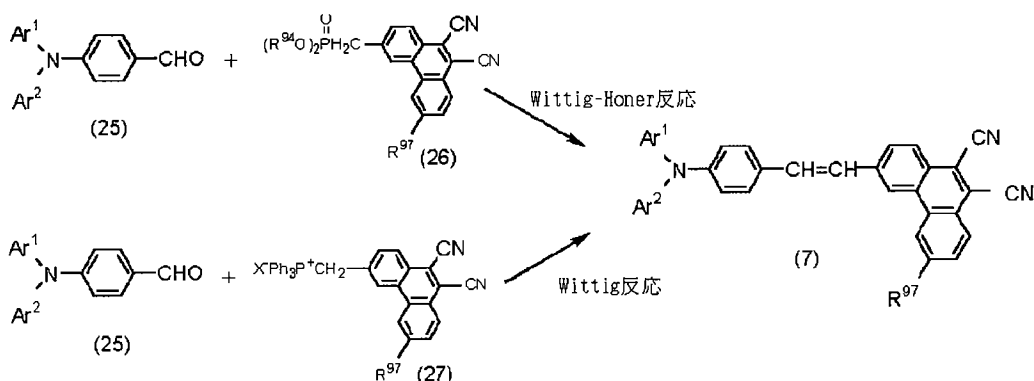
【0015】本発明の化合物の製造方法は、具体的には、前記縮合をウィッティヒホーナー (Wittig-Horner) 反応又はウィッティヒ (Wittig) 反応によって行い、前記ホスホン酸エステル及び／又は前記ホスホニウムを溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドと縮合させるものである。

【0016】例えば、下記一般式(7)で表わされるアミノスチリルフェナントレン化合物を得るに際し

【化80】一般式(7)：



(但し、前記一般式(7)において、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>、R<sup>60</sup>はそれぞれ、前記したものと同じである。)、下記一般式(25)で表される、4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドと；下記一般式(23)のホスホン酸エステル及び／又は下記一般式(24)で表され

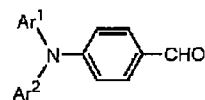


【0018】この反応はまず、前記一般式(26)又は前記一般式(27)の化合物を適当な溶媒中で塩基と処理することにより、カルボアニオンを発生させることから始まり、次にこのカルボアニオンを前記一般式(25)のアルデヒドと縮合することにより完結する。塩基と溶媒の組み合わせとしては、以下のものが考えられる。

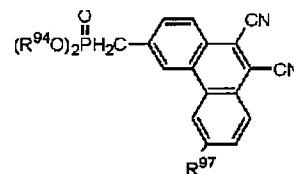
【0019】水酸化ナトリウム／水、炭酸ナトリウム／水、炭酸カリウム／水、ナトリウムエトキシド／エタノール又はジメチルホルムアミド、ナトリウムメトキシド／メタノール-ジエチルエーテル混合溶媒又はジメチルホルムアミド、トリエチルアミン／エタノール又はジグリム又はクロロホルム又はニトロメタン、ピリジン／塩化メチレン又はニトロメタン、1, 5-ジサザビシクロ[4. 3. 0]ノン-5-エン／ジメチルスルホキシ

るホスホニウムと；を縮合させる。

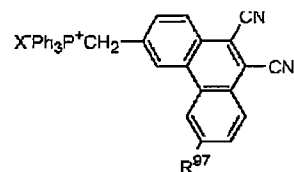
【化81】一般式(25)：



一般式(26)：



一般式(27)：



(但し、前記一般式(26)及び(27)において、R<sup>94</sup>、R<sup>97</sup>及びXは前記したものと同じである。)

【0017】この反応をスキームで表わすと、例えば反応スキーム1のようなになる。

【化82】反応スキーム1：

はテトラヒドロフラン又はベンゼン又はジメチルホルムアミド、フェニルリチウム／ジエチルエーテル又はテトラヒドロフラン、t-ブチルリチウム／ジエチルエーテル又はテトラヒドロフラン、ナトリウムアミド／アンモニア、水素化ナトリウム／ジメチルホルムアミド又はテトラヒドロフラン、トリエチルナトリウム／ジエチルエーテル又はテトラヒドロフラン等。

【0020】この反応は比較的低温(-30℃~30℃)で進行し、選択的であるため、クロマトグラフィーによる目的物の精製が容易であることに加え、前記一般式(7)の本発明の化合物は結晶性が高いため再結晶により純度を向上させることができる。再結晶の方法については、特に問わないが、アセトンに溶解し、ヘキサンを添加する方法、或いはトルエンに加熱溶解し、濃縮、冷却する方法が簡便である。この反応は常圧で3~24

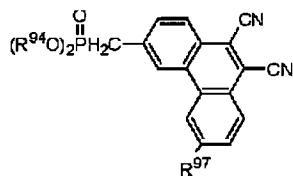
【0021】本発明の化合物の製造方法によって、前記一般式(17)、(18)、(19)、(20)、(21)、(22)又は(23)で表されるアミノスチルフェナントレン化合物を得ることができ、具体的には前記一般式(24)-1、(24)-2、(24)-3、(24)-4、(24)-5、(24)-6、(24)-7、(24)-8、(24)-9、(24)-10、(24)-11、(24)-12又は(24)-13で表されるアミノスチルフェナントレン化合物を得ることができる。

【0022】本発明はまた、本発明の化合物の合成中間体として好適な種々の化合物も提供するものである。

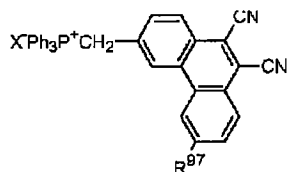
【0023】即ち、前記一般式[I]、[II]、[III]、[IV]又は[V]で表されるアミノスチルフェナントレン化合物の合成中間体として用いられる前記一般式[VII]で表されるホスホン酸エステル又は前記一般式[VIII]ホスホニウムである。

【0024】この合成中間体(以下、本発明の合成中間体1と称する。)は、具体的には下記一般式(26)又は(27)で表される。

【化83】一般式(26)：



一般式(27)：

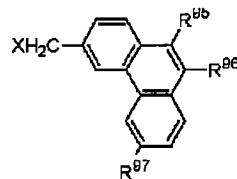


(但し、前記一般式(26)及び(27)において、R<sup>94</sup>、R<sup>97</sup>及びXは前記したものと同一である。)

【0025】本発明の合成中間体は、その前駆体としての合成中間体から次のようにして導くことができる。

【0026】下記一般式[IX]で表されるハロゲン化アリール化合物と、下記一般式[X]で表される亜りん酸トリアルキル又はトリフェニルホスフィン(PPh<sub>3</sub>)とを反応させることによって、下記一般式[VII]で表されるホスホン酸エステル又は下記一般式[VIII]で表されるホスホニウムを合成中間体として得る。この反応は、無溶媒または120℃以上の沸点を有するキシレン等の溶媒中、又は大過剰の亜りん酸トリアルキル中で反応温度120℃～160℃、常圧で反応時間30分～24時間としてよい。

【化84】一般式[IX]：



(但し、一般式[IX]において、R<sup>95</sup>及びR<sup>96</sup>はそれぞれ同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、残りがシアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、R<sup>97</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基であり、Xはハロゲン原子である。)

一般式[X]：



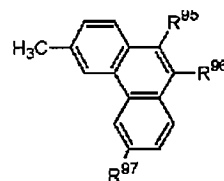
(但し、前記一般式[X]において、R<sup>94</sup>は炭化水素基、特に炭素数1～4の飽和若しくは不飽和の炭化水素基である。)

【0027】本発明はまた、合成中間体1を得るための合成中間体として、前記一般式[IX]で表されるハロゲン化アリール化合物(以下、本発明の合成中間体2と称する。)も提供するものである。

【0028】本発明の合成中間体2は下記一般式[XI]で表されるジメチルフェナントレン化合物と、下記一般式[XII]で表されるN-ハロゲン化スクシンイミドとを照射下に反応させることによって得ることができる。例えば、四塩化炭素、クロロホルム、ベンゼン、クロロベンゼン等の溶媒中、高圧水銀灯、低圧水銀灯、キセノン灯、ハロゲン灯、日光、蛍光灯等の光源を用いて20～120℃の温度、常圧で30～48時間の反応時間で反応させる。

【0029】

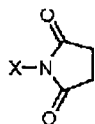
【化85】一般式[XI]：



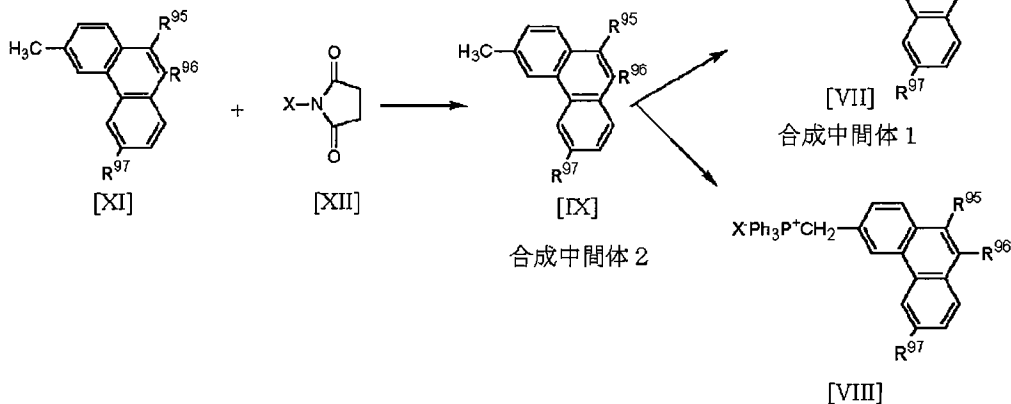
(但し、一般式[XI]において、R<sup>95</sup>及びR<sup>96</sup>はそれぞれ同一の若しくは異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基又はハロゲン原子であり、R<sup>97</sup>は水素原子、炭素数1～6の飽和若しくは不飽和のアルキル基、又は置換基を有してもよいアリール基である。)

【0030】

【化86】一般式[XII]：



(但し、前記一般式 [XII] においてXはハロゲン原子である。)



【0033】図10～図13は、本発明の化合物を有機発光材料として用いる有機電界発光素子（EL素子）の例をそれぞれ示すものである。

【0034】図10は陰極3を発光光20が透過する透過型有機電界発光素子Aであって、発光光20は保護層4の側からも観測できる。図11は陰極3での反射光も発光光20として得る反射型有機電界発光素子Bを示す。

【0035】図中、1は有機電界発光素子を形成するための基板であり、ガラス、プラスチック及び他の適宜の材料を用いることができる。また、有機電界発光素子を他の表示素子と組み合わせて用いる場合には、基板を共有することもでき、例えばアクティブマトリックス駆動する場合には、TFT（Thin Film Transistors：薄膜トランジスタ）を基板として用いることも可能である。2は透明電極（陽極）であり、例えば、上記透過型有機電界発光素子Aでは透明電極ITO（Indium tin oxide）、IZO（Indium zinc oxide）、SnO<sub>2</sub>等を使用でき、また反射型有機電界発光素子BではCr、Fe、Co、Ni、Cu、Ta、W、Pt、Mo、Au及びこれらの合金等を使用できる。

【0036】また、5は有機発光層であり、本発明の化合物を発光材料として含有している。この発光層について、有機電界発光20を得る層構成としては、従来公知の種々の構成を用いることができる。後述するように、例えば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれかを構成する材料が発光性を有する場合、これらの薄膜を積層した構造を使用できる。更に本発明の目的を満たす範囲で電荷輸送性能を上げるために、正孔輸送層と電子輸送層のいずれか若しくは両方が、複数種の材料の薄膜を積層した

【0031】以上に述べた各合成中間体1、2をそれぞれ得る反応は、例えば次の反応スキーム2で示すことができる。

【0032】

【化87】反応スキーム2：

膜を使用するのを妨げない。また、発光性能を上げるために、少なくとも1種以上の蛍光性の材料を用いて、この薄膜を正孔輸送層と電子輸送層の間に挟持した構造、更に少なくとも1種以上の蛍光性の材料を正孔輸送層若しくは電子輸送層、またはこれらの両方に含ませた構造を使用してもよい。これらの場合には、発光効率を改善するために、正孔または電子の輸送を制御するための薄膜をその層構成に含ませることも可能である。

【0037】本発明の化合物は、電子輸送性能と正孔輸送性能の両方を持つため、素子構成中、電子輸送層を兼ねた発光層としても、或いは正孔輸送層を兼ねた発光層としても用いることが可能である。また、本発明の化合物を発光層として、電子輸送層と正孔輸送層とで挟み込んだ構成とすることも可能である。

【0038】なお、図10及び図11中、3は陰極であり、電極材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金、LiF、LiO<sub>2</sub>、或いはこれらを積層した構造を使用できる。透過型の有機電界発光素子においては、陰極の厚さを調節することにより、用途に合った光透過率を得ることができる。一方、反射型の有機電界発光素子においては、陰極の厚さを薄くして高い透過率を保持し、なおかつ陽極を反射率の高い材料で構成することによって、有機電界発光を陰極側に取り出すことができる。また、図中の4は封止・保護層であり、有機電界発光素子全体を覆う構造とすることにより、その効果が上がる。気密性が保たれば、適宜の材料を使用することができる。また、8は電流注入用の駆動電源である。

【0039】本発明に基づく有機電界発光素子において、有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが積層された

孔輸送層又は電子輸送層の形成材料として本発明の化合物が用いられてよい。或いは、有機層が、正孔輸送層と発光層と電子輸送層とが順次積層された有機積層構造（ダブルヘテロ構造）を有しており、発光層の形成材料として本発明の化合物が用いられてよい。

【0040】このような有機積層構造を有する有機電界発光素子の例を示すと、図12は、透過性の基板1上に、透光性の陽極2と、正孔輸送層6と電子輸送層7とからなる有機層5aと、陰極3とが順次積層された積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によって封止されてなる、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子Cである。

【0041】図12に示すように発光層を省略した層構成の場合には、正孔輸送層6と電子輸送層7の界面から所定波長の発光光20を発生する。これらの発光光は基板1側から観測される。

【0042】また、図13は、透光性の基板1上に、透光性の陽極2と、正孔輸送層10と発光層11と電子輸送層12とからなる有機層5bと、陰極3とが順次積層された積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によって封止されてなる、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子Dである。

【0043】図13に示した有機電界発光素子においては、陽極2と陰極3の間に直流電圧を印加することにより、陽極2から注入された正孔が正孔輸送層10を経て、また陰極3から注入された電子が電子輸送層12を経て、それぞれ発光層11に到達する。この結果、発光層11においては電子／正孔の再結合が生じて一重項励起子が生成し、この一重項励起子から所定波長の発光を発生する。

【0044】上述した各有機電界発光素子C、Dにおいて、基板1は、例えば、ガラス、プラスチック等の光透過性の材料を適宜用いることができる。また、他の表示素子と組み合わせる場合や、図12及び図13に示した積層構造をマトリックス状に配置する場合等は、この基板を共用としてよい。また、素子C、Dはいずれも、透過型、反射型のいずれの構造もとらうる。

【0045】また、陽極2は、透明電極であり、ITO（indium tin oxide）や $\text{SnO}_2$ 等が使用できる。この陽極2と正孔輸送層6（又は正孔輸送層10）との間には、電荷の注入効率を改善する目的で、有機物若しくは有機金属化合物からなる薄膜を設けてもよい。なお、保護膜4が金属等の導電性材料で形成されている場合は、陽極2の側面に絶縁膜が設けられていてもよい。

【0046】また、有機電界発光素子Cにおける有機層5aは、正孔輸送層6と電子輸送層7とが積層された有機層であり、これらのいずれか又は双方に本発明の化合物が含有され、発光性の正孔輸送層6又は電子輸送層7としてよい。有機電界発光素子Dにおける有機層5b

11と電子輸送層12とが積層された有機層であるが、その他、種々の積層構造を取ることができる。例えば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれか若しくは両方が発光性を有していてもよい。

【0047】また、特に、正孔輸送層6又は電子輸送層7や発光層11が本発明の化合物からなる層であることが望ましいが、これらの層を本発明の化合物のみで形成してもよく、或いは、本発明の化合物と他の正孔又は電子輸送材料（例えば、芳香族アミン類やピラゾリン類等）との共蒸着によって形成してもよい。さらに、正孔輸送層において、正孔輸送性能を向上させるために、複数種の正孔輸送材料を積層した正孔輸送層を形成してもよい。

【0048】また、有機電界発光素子Cにおいて、発光層は電子輸送性発光層7であってよいが、電源8から印加される電圧によっては、正孔輸送層6やその界面で発光される場合がある。同様に、有機電界発光素子Dにおいて、発光層は層11以外に、電子輸送層12であっててもよく、正孔輸送層10であっててもよい。発光性能を向上させるために、少なくとも1種の蛍光性材料を用いた発光層11を正孔輸送層と電子輸送層との間に挟持させた構造であるのがよい。または、この蛍光性材料を正孔輸送層又は電子輸送層、或いはこれら両層に含有させた構造を構成してよい。このような場合、発光効率を改善するために、正孔又は電子の輸送を制御するための薄膜（ホールブロッキング層やエキシトン生成層など）をその層構成に含ませることも可能である。

【0049】また、陰極3に用いる材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金を使用でき、これらの金属層が積層した構造であってもよい。なお、陰極の厚みや材質を適宜選択することによって、用途に見合った有機電界発光素子を作製できる。

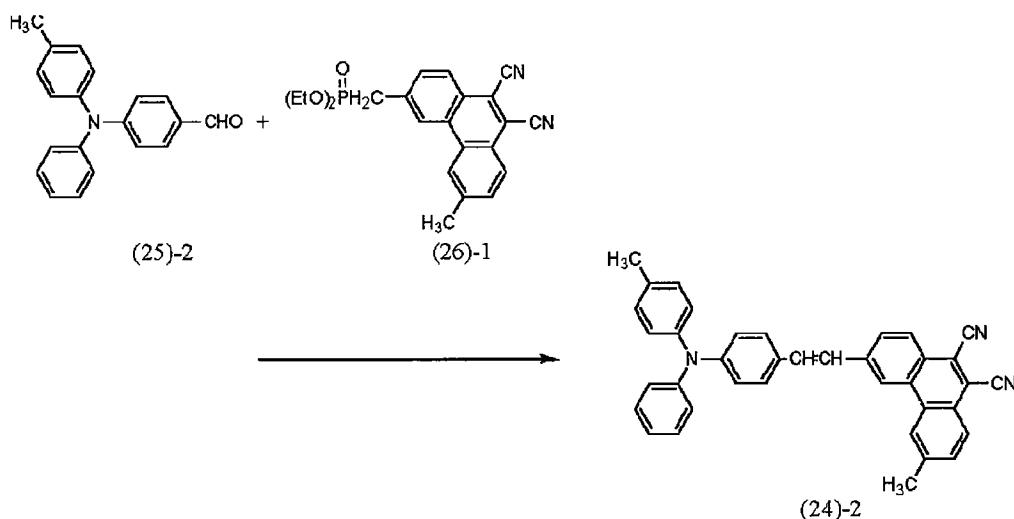
【0050】また、保護膜4は、封止膜として作用するものであり、有機電界発光素子全体を覆う構造とすることで、電荷注入効率や発光効率を向上できる。なお、その気密性が保たれれば、アルミニウム、金、クロム等の単金属又は合金など、適宜その材料を選択できる。

【0051】上記した各有機電界発光素子に印加する電流は通常、直流であるが、パルス電流や交流を用いてもよい。電流値、電圧値は、素子は介しない範囲内であれば特に制限はないが、有機電界発光素子の消費電力や寿命を考慮すると、なるべく小さい電気エネルギーで効率良く発光させることが望ましい。

【0052】次に、図14は、本発明の有機電界発光素子を用いた平面ディスプレイの構成例である。図示の如く、例えばフルカラーディスプレイの場合は、赤（R）、緑（G）及び青（B）の3原色を発光可能な有機層5（5a、5b）が、陰極3と陽極2との間に配さ

イプ状に設けることができ、輝度信号回路14及びシフトレジスタ内蔵の制御回路15により選択されて、それぞれに信号電圧が印加され、これによって、選択された陰極3及び陽極2が交差する位置（画素）の有機層が発光するように構成される。この駆動方法としては、単純マトリックス方式又はアクティブマトリックス方式を用いることができる。

【0053】即ち、図14は例えば8×3RGB単純マトリックスであって、正孔輸送層と、発光層および電子輸送層のいずれか少なくとも一方とからなる積層体5を陰極3と陽極2の間に配置したものである（図12又は図13参照）。陰極と陽極は、ともにストライプ状にパターンニングするとともに、互いにマトリックス状に直行させ、シフトレジスタ内蔵の制御回路15および14により時系列的に信号電圧を印加し、その交叉位置で発光するように構成されたものである。かかる構成のEL素



【0057】反応容器に水素化ナトリウム（ミネラルオイル入り）0.194g（4.86mmol）を計り取り、ヘキサンで2度洗い、無水テトラヒドロフラン10mLに懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でWittig-Horner試薬（(26)-1）0.583g（4.62mmol）と4-[N-（メチルフェニル）-N-フェニル]アミノベンズアルデヒド（(25)-2）0.511g（1.78mmol）の無水テトラヒドロフラン：N，N-ジメチルホルムアミド＝85：15混合溶液100mLを15分かけて滴下し、そのまま0℃で6時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、無水硫酸ナトリウム上で乾燥した。

【0058】シリカゲルクロマトグラフィー（Wako gel C-300、トルエン：クロロホルム＝2：1）にて精製し、トルエン－ヘキサンより4回再結晶して赤色結晶0.572gを得た。

子は、文字・信号等のディスプレイとしては勿論、画像再生装置としても使用できる。また陰極3と陽極2のストライプ状パターンを赤（R）、緑（G）、青（B）の各色毎に配し、マルチカラーあるいはフルカラーの全固体型フラットパネルディスプレイを構成することが可能となる。

【0054】

【実施例】以下に本発明を実施例について具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0055】実施例1

<アミノスチリルフェナントレン化合物（構造式（24）-2）の合成例>

【0056】

【化88】

【0059】<sup>1</sup>H NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同定した。収率67%。

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>) δ (ppm) : 2.35(s, 3H), 2.72(s, 3H), 7.03-7.50(m, 15H), 7.67(d, 1H), 8.98(d, 1H), 8.25(m, 2H), 8.54(s, 1H), 8.63(s, 1H)

【0060】DSC（示差走査熱量測定：differential scanning calorimetry）による熱分析の結果、融点は280℃であったが、ガラス転移点は観測されなかった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は453nm、蛍光極大波長は643nmであった。またその<sup>1</sup>H NMRスペクトルは図1に示すとおりであった。

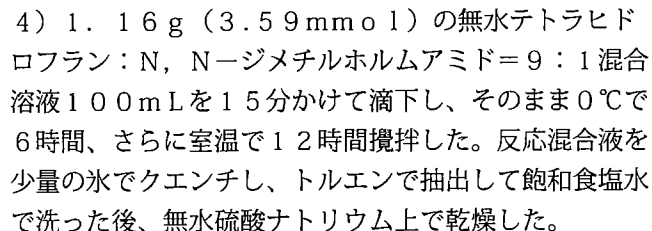
【0061】実施例2

<アミノスチリルフェナントレン化合物（(24)-3）の合成例>

【0062】

【化89】

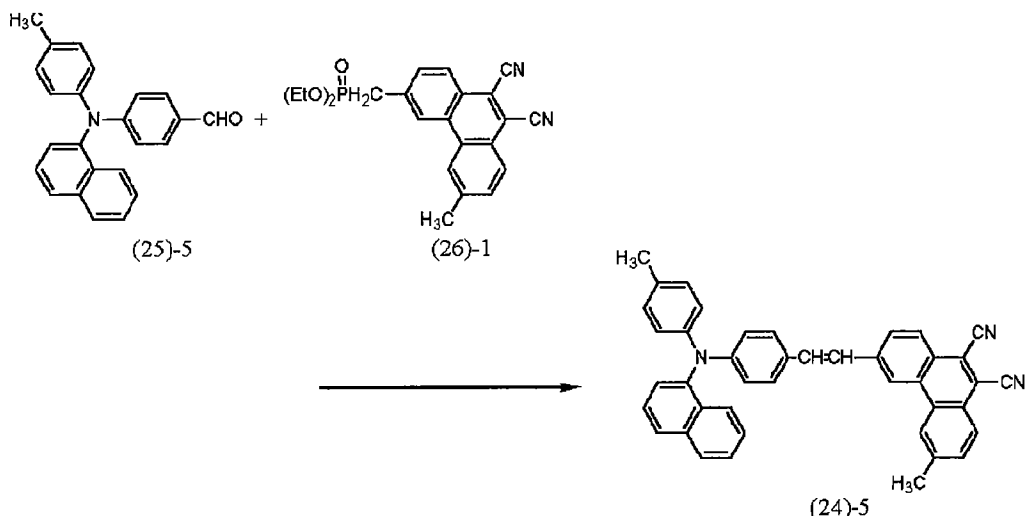




シュ, トルエン:テトラヒドロフラン=1:1) により精製したのち、フラッシュクロマトグラフィー (Merk Silica Gel HF254, トルエン) で精製し、トルエン-ヘキサンから3回再結晶して赤色結晶 (7) 0.310 gを得た。

【0071】 $^1\text{H}$  NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同定した。収率17%。

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm): 2.72(s, 3H), 6.97-7.54(m, 15H), 7.67(d, 1H), 7.82(d, 1H), 7.97(m, 3H), 8.27(m, 2H), 8.54(s, 1H), 8.63(s, 1H)



【0075】反応容器に水素化ナトリウム (ミネラルオイル入り) 0.194 g (4.86 mmol) を計り取り、ヘキサンで2度洗い、無水テトラヒドロフラン10 mLに懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でWittig-Horner ((26)-1) 試薬0.583 g (1.62 mmol) と4-[N-(メチルフェニル)-N-(1-ナフチル)]アミノベンズアルデヒド ((25)-5) 0.600 g (1.78 mmol) の無水テトラヒドロフラン:N,N-ジメチルホルムアミド=85:15混合溶液100 mLを15分かけて滴下し、そのまま0℃で6時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、無水硫酸ナトリウム上で乾燥した。

【0076】シリカゲルクロマトグラフィー (Wako gel C-300, トルエン:クロロホルム=2:1) にて精製し、トルエン-ヘキサンより4回再結晶して赤色結晶

【0072】DSCによる熱分析の結果、融点は315℃であったが、ガラス転移点は観測されなかった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は450 nm、蛍光極大波長は631 nmであった。またその $^1\text{H}$  NMRスペクトルは図3に示すとおりであった。

#### 【0073】実施例4

<アミノスチリルフェナントレン化合物 ((24)-5) の合成例>

【0074】

【化91】

0.657 gを得た。

【0077】 $^1\text{H}$  NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同定した。収率70%。

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm): 2.33(s, 3H), 2.72(s, 3H), 6.92-7.53(m, 14H), 7.67(d, 1H), 7.81(d, 1H), 7.90-8.02(m, 3H), 8.28(m, 2H), 8.55(s, 1H), 8.65(s, 1H)

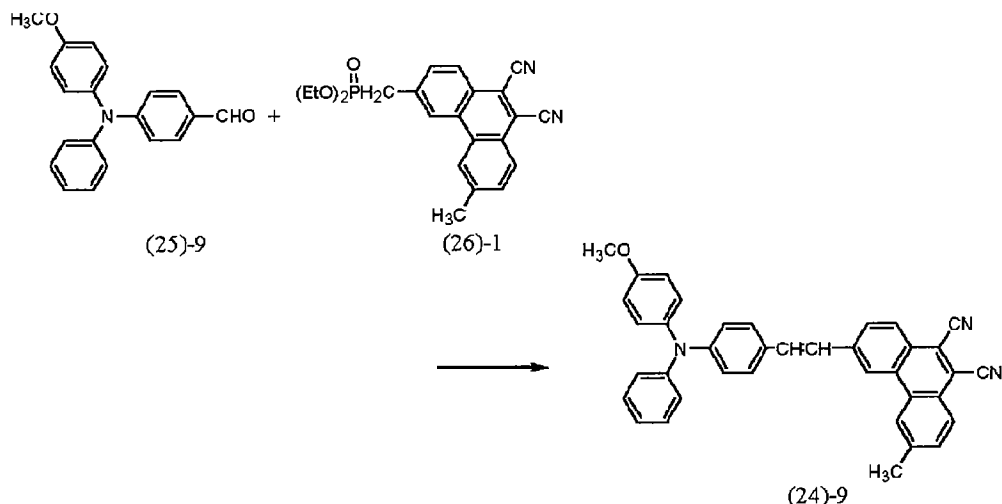
【0078】DSCによる熱分析の結果、融点は320℃であったが、ガラス転移点は観測されなかった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は455 nm、蛍光極大波長は634 nmであった。またその $^1\text{H}$  NMRスペクトルは図4に示すとおりであった。

#### 【0079】実施例5

<アミノスチリルフェナントレン化合物 ((24)-9) の合成例>

【0080】

【化92】



【0081】反応容器に水素化ナトリウム（ミネラルオイル入り）0.183 g（4.58 mmol）を計り取り、ヘキサンで2度洗い、無水テトラヒドロフラン20 mLに懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でWittig-Horner試薬（（26）-1）0.505 g（2.57 mmol）と4-〔N-（メトキシフェニル）-N-フェニル〕アミノベンズアルデヒド（（25）-9）0.511 g（1.68 mmol）の無水テトラヒドロフラン：N，N-ジメチルホルムアミド＝85：15混合溶液100 mLを15分かけて滴下し、そのまま0℃で6時間撹拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、無水硫酸ナトリウム上で乾燥した。

【0082】シリカゲルクロマトグラフィー（Wako gel C-300, トルエン）にて精製し、トルエン-ヘキサンより4回再結晶して赤色結晶0.574 gを得た。

【0083】 $^1\text{H}$  NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同定した。収率69%。

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm) : 2.72(s, 3H), 3.83(s, 3H), 6.88(d, 2H), 6.90-7.40(m, 11H), 7.46(d, 2H), 7.67(d, 1H), 8.01(d, 1H), 8.28(m, 2H), 8.55(s, 1H), 8.65(s, 1H)

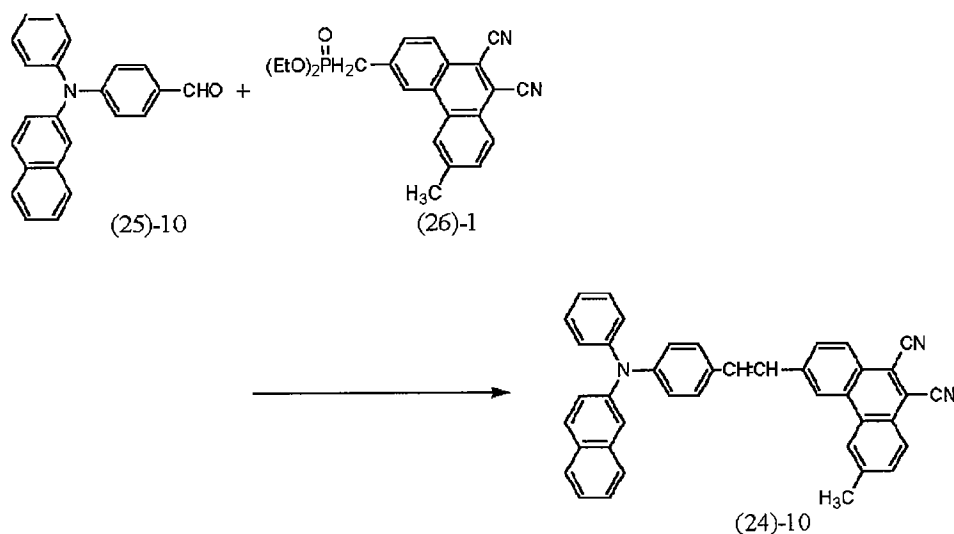
【0084】DSCによる熱分析の結果、融点は277℃であったが、ガラス転移点は観測されなかった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は459 nm、蛍光極大波長は約690 nmであった。またその $^1\text{H}$  NMRスペクトルは図5に示すとおりであった。

#### 【0085】実施例6

<アミノスチリルフェナントレン化合物（（24）-10）の合成例>

【0086】

【化93】



【0087】反応容器に水素化ナトリウム（ミネラルオイル入り）0.167 g（4.17 mmol）を計り取り、ヘキサンで2度洗い、無水テトラヒドロフラン：無水ジメチルホルムアミド＝85：15混合溶液10 mLに懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でWittig-Horner試薬（（26）-1）0.500 g（1.3

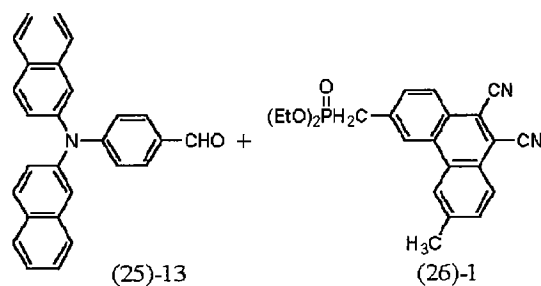
mmol）アミノベンズアルデヒド（（25）-10）0.494 g（1.53 mmol）の無水テトラヒドロフラン：N，N-ジメチルホルムアミド＝85：15混合溶液90 mLを15分かけて滴下し、そのまま0℃で3時間撹拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、無水硫酸ナトリ

【0088】シリカゲルクロマトグラフィー（Wako gel C-300, トルエン：クロロホルム＝2：1）にて精製し、トルエン－ヘキサンより4回再結晶して赤色結晶0.531 gを得た。

【0089】 $^1\text{H}$  NMRおよびFAB-MS測定により、目的物と同定した。収率68%。

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm): 2.72(s, 3H), 7.11-7.44(m, 12H), 7.52(m, 3H), 7.67(m, 2H), 7.79(m, 2H), 8.02(d, 1H), 8.25(d, 1H), 8.30(d, 1H), 8.56(s, 1H), 8.66(s, 1H)

【0090】DSCによる熱分析の結果、融点は284



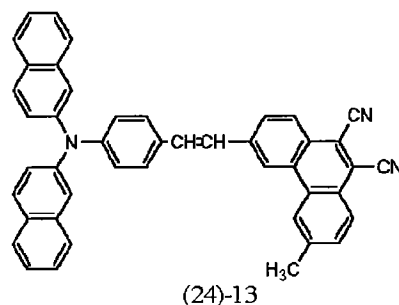
℃、ガラス転移点は154℃であった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は454 nm、蛍光極大波長は647 nmであった。またその $^1\text{H}$  NMRスペクトルは図6に示すとおりであった。

#### 【0091】実施例7

<アミノスチリルフェナントレン化合物((24)-13)の合成例>

【0092】

【化94】



【0093】反応容器に水素化ナトリウム（ミネラルオイル入り）0.167 g (4.17 mmol)を計り取り、ヘキサンで2度洗い、無水テトラヒドロフラン：無水ジメチルホルムアミド＝85：15混合溶液10 mLに懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でWittig-Horner試薬((26)-1) 0.500 g (1.39 mmol)と4-ビス[N-(2-ナフチル)]アミノベンズアルデヒド((25)-13) 0.571 g (1.53 mmol)の無水テトラヒドロフラン：N,N-ジメチルホルムアミド＝85：15混合溶液90 mLを15分かけて滴下し、そのまま0℃で2時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、無水硫酸ナトリウム上で乾燥した。

【0094】シリカゲルクロマトグラフィー（Wako gel C-300, トルエン：クロロホルム＝2：1）にて精製し、トルエン－ヘキサンより4回再結晶して赤色結晶0.635 gを得た。

【0095】 $^1\text{H}$  NMRおよびFAB-MS測定により、目的物と同定した。収率75%。

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm): 2.71(s, 3H), 7.19(d, 2H), 7.31-7.45(m, 7H), 7.51-7.82(m, 12H), 8.02(d, 1H), 8.27(d, 1H), 8.32(d, 1H), 8.55(s, 1H), 8.68(s, 1H)

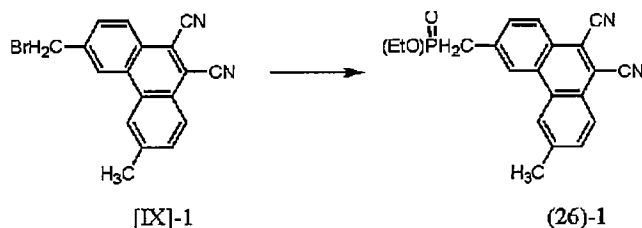
℃、ガラス転移点は193℃であった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は455 nm、蛍光極大波長は639 nmであった。またその $^1\text{H}$  NMRスペクトルは図7に示すとおりであった。

#### 【0097】実施例8

<ホスホン酸エステル((26)-1)の合成例>

【0098】

【化95】



【0099】3-(ブロモメチル)-6-メチルフェナントレン9,10-ジカルボニトリル([IX]-1) 0.860 g (2.57 mmol)と垂リン酸トリエチル3.28 g (19.8 mmol)をキシレン150 mL中に懸濁させ、24時間おだやかに還流し、目的物を定量的に得た。

【0100】 $^1\text{H}$  NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同定した。

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm): 1.31(t, 6H), 2.70(s, 3H), 3.

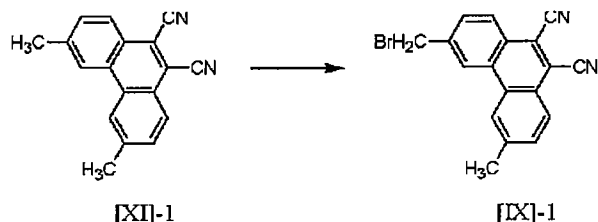
(m, 2H), 8.51(d, 1H), 8.70(brs, 1H)  $^1\text{H}$  NMRスペクトルは図8に示すとおりであった。

#### 【0101】実施例9

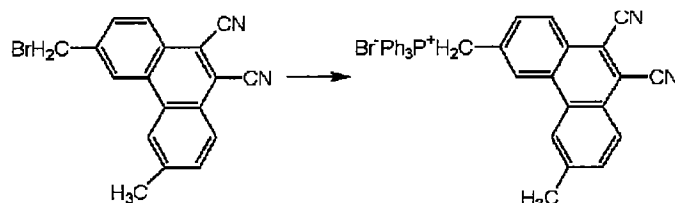
<3-(プロモメチル)-6-メチルフェナントレン9,10-ジカルボニトリル ([IX]-1)の合成例>

#### 【0102】

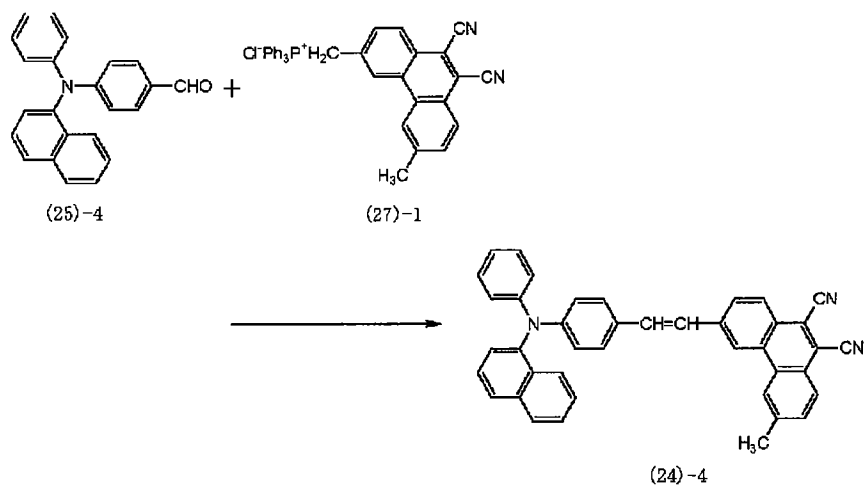
#### 【化96】



【0103】3,6-ジメチルフェナントレン-9,10-ジカルボニトリル ([XI]-1) 0.800 g (3.12 mmol) をクロロホルム 200 mL に溶解



【0107】3-(プロモメチル)-6-[IX]-1メチルフェナントレン9,10-ジカルボニトリル ([IX]-1) 0.860 g (2.57 mmol) とトリフェニルホスフィン 3.37 g (12.9 mmol) をキシレン 150 mL に懸濁させ、24時間おだやかに還流した。反応溶液を半分に濃縮し、生じた沈殿物をろ過して目的物を定量的に得た。 $^1\text{H}$  NMR及びFAB-MS測定に



【0110】反応容器に水酸化ナトリウム（ミネラルオイル入り）0.167 g (4.17 mmol) を計り取り、ヘキサンで2度洗い、無水テトラヒドロフラン：無水ジメチルホルムアミド=85：15混合溶液 10 mL に懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でWittig試薬 ((27)-1) 0.830 g (1.39 mmol) と

し窒素を通じて酸素脱気を行った後、N-ブロモスクシンイミド 0.556 g (3.12 mmol) を添加して6時間還流した。さらにNBSO. 556 g (3.12 mmol) を添加して6時間還流し、反応溶液を50 mLまで濃縮して減圧ろ過し、得られた沈殿物をエタノール、続いてヘキサンでよく洗い、目的物 0.860 g を得た。

【0104】 $^1\text{H}$  NMR及びFAB-MS測定により、目的物と同定した。収率 82%。

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm) : 4.77(s, 2H), 7.68(m, 1H), 7.90(m, 1H), 8.30(m, 1H), 8.37(m, 1H), 8.53(s, 1H), 8.73(s, 1H)  $^1\text{H}$  NMRスペクトルは図9に示すとおりであった。

#### 【0105】実施例10

<ホスホニウム ((27)-1)の合成例>

#### 【0106】

#### 【化97】

より、目的物と同定した。

#### 【0108】実施例11

<アミノスチリルフェナントレン化合物 ((24)-4)の合成例>

#### 【0109】

#### 【化98】

ンズアルデヒド ((25)-4) 0.494 g (1.53 mmol) の無水テトラヒドロフラン：N,N-ジメチルホルムアミド=85：15混合溶液 90 mL を15分かけて滴下し、そのまま0℃で3時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、無水硫酸ナトリウム上で乾燥し

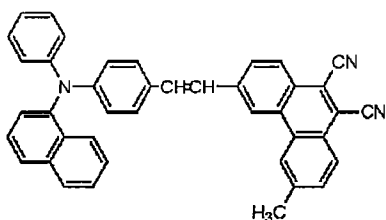
【0111】シリカゲルクロマトグラフィー（Wako gel C-300, トルエン：クロロホルム＝2：1）にて精製し、トルエン－ヘキサンより4回再結晶して赤色結晶0.318gを得た。<sup>1</sup>H NMR及びFAB-MS測定により、Wittig-Honer反応により合成した(24)-4（実施例3）と同様のスペクトルが得られ、目的物と同一とした（収率41％）。

#### 【0112】実施例12

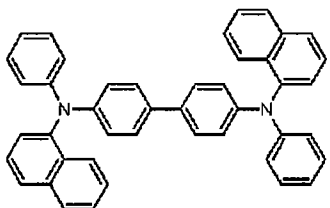
本実施例は、下記構造式(24)-4の化合物を電子輸送性発光層、また4,4'-ビス[N,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニル]ビフェニルジアミン( $\alpha$ -NPD)を正孔輸送層として用い、シングルヘテロ構造透過型有機電界発光素子を作製した例である。

#### 【0113】

【化99】構造式(24)-4：



$\alpha$ -NPD：



【0114】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により $10^{-4}$ Pa以下の真空下で正孔輸送材料である $\alpha$ -NPDを50nmの厚さに蒸着した。さらに、電子輸送性発光材料として上記構造式(24)-4を正孔輸送層に接して50nm蒸着した。蒸着レートは各々0.2nm/秒とした。

【0115】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例10による図12に示したが如き有機電界発光素子を作製した。

【0116】このように作製した実施例10の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、637nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。分光測定は、大塚電子社製のフォトダイオードアレイを検出器とした分光器を用いた。また、

m<sup>2</sup>の輝度が得られた。

【0117】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度200cd/m<sup>2</sup>で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで900時間であった。

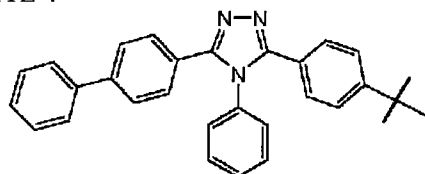
#### 【0118】実施例13

本実施例は、前記構造式(24)-4の化合物を発光層、前記構造式で表される4,4'-ビス[N,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニル]ビフェニルジアミン( $\alpha$ -NPD)を正孔輸送層、及び下記構造式で表される2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1-フェニル-1,3,4-トリアゾール(TAZ)を電子輸送層材料として用い、ダブルヘテロ構造透過型有機電界発光素子を作成した例である。

#### 【0119】

【化100】

TAZ：



【0120】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により $10^{-4}$ Pa以下の真空下で正孔輸送材料である $\alpha$ -NPDを50nmの厚さに蒸着した。次に、発光材料としての前記構造式(24)-4で表される化合物を正孔輸送層に接して25nmの厚さに蒸着した。さらに、電子輸送材料としてのTAZを発光層に接して25nmの厚さに蒸着した。蒸着レートは各々0.2nm/秒とした。

【0121】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として50nm(Mg膜)及び150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例13による図13に示したような有機電界発光素子を作製した。

【0122】このように作製した実施例13の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、637nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。分光測定は、大塚電子社製のフォトダイオードアレイを検出器とした分光器を用いた。また、電圧－輝度測定を行ったところ、8Vで2000cd/m<sup>2</sup>の輝度が得られた。

気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観測されなかった。また、初期輝度200cd/m<sup>2</sup>で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで1100時間であった。

#### 【0124】

【発明の作用効果】本発明のアミノスチリルフェナントレン化合物は、その構造中に導入される置換基に依存して、発光極大波長の異なる赤色の強い発光を示す有機発光材料として有効に利用することができ、高い融点を有する物質であり、耐熱性に優れると共に、電気的、熱的或いは化学的な安定性に優れ、また非晶質でガラス状態を容易に形成し得、昇華性もあって真空蒸着等によって均一なアモルファス膜を形成することも出来る。また、本発明の化合物は、本発明の合成中間体を経て一般的かつ高効率な方法で製造することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例1による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図2】本発明の実施例2による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図3】本発明の実施例3による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図4】本発明の実施例4による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図5】本発明の実施例5による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図6】本発明の実施例6による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図7】本発明の実施例7による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図8】本発明の実施例8による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図9】本発明の実施例9による化合物の<sup>1</sup>H NMRスペクトル図である。

【図10】本発明に基づく有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図11】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図12】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

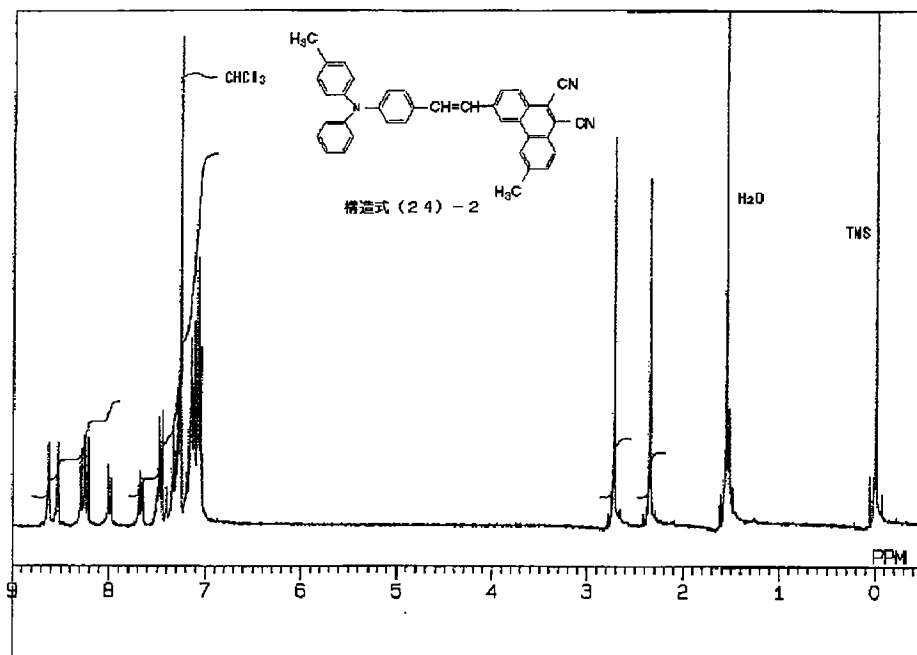
【図13】同、更に他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図14】同、有機電界発光素子を用いたフルカラーの平面ディスプレイの構成図である。

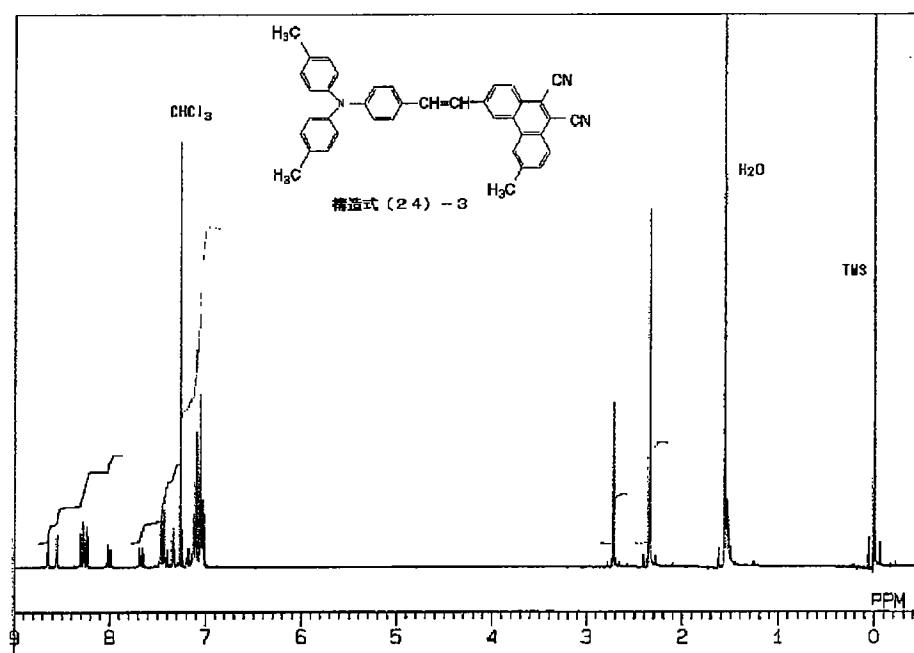
#### 【符号の説明】

1…基板、2…透明電極（陽極）、3…陰極、4…保護膜、5、5a、5b…有機層、6…正孔輸送層、7…電子輸送層、8…電源、10…正孔輸送層、11…発光層、12…電子輸送層、14…輝度信号回路、15…制御回路、20…発光光、A、B、C、D…有機電界発光素子

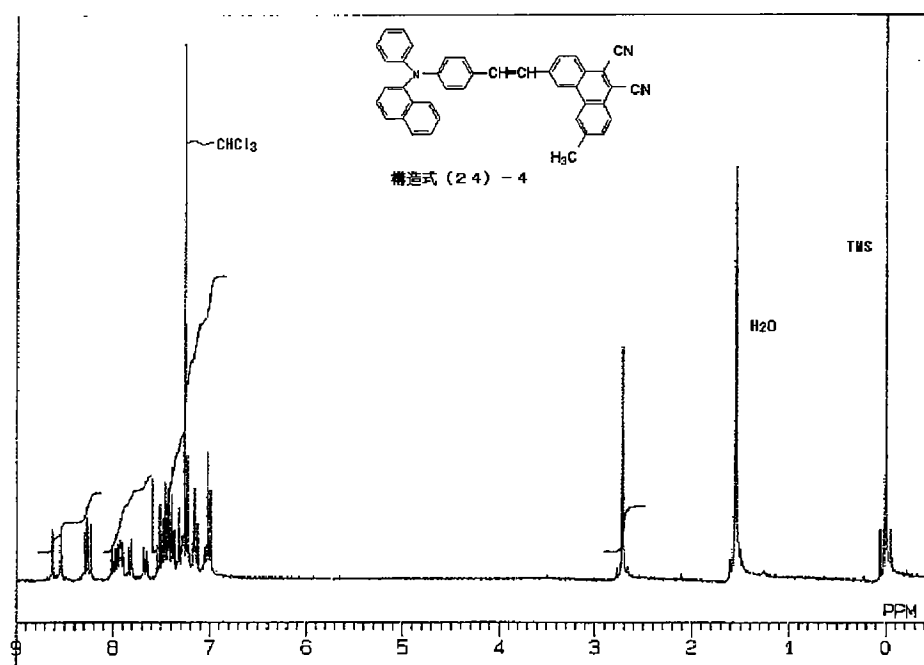
【図1】



【図 2】

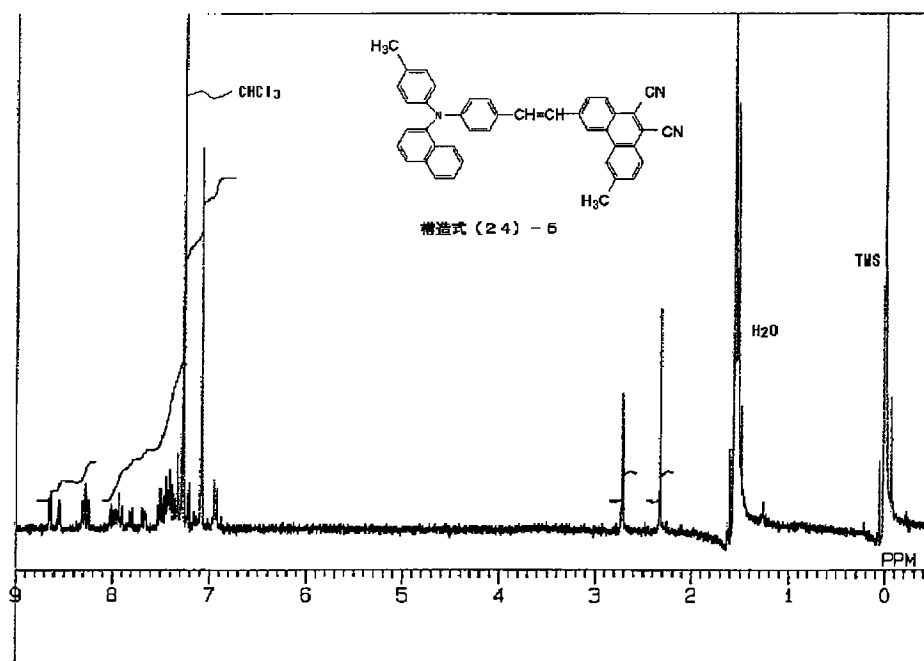


【図 3】

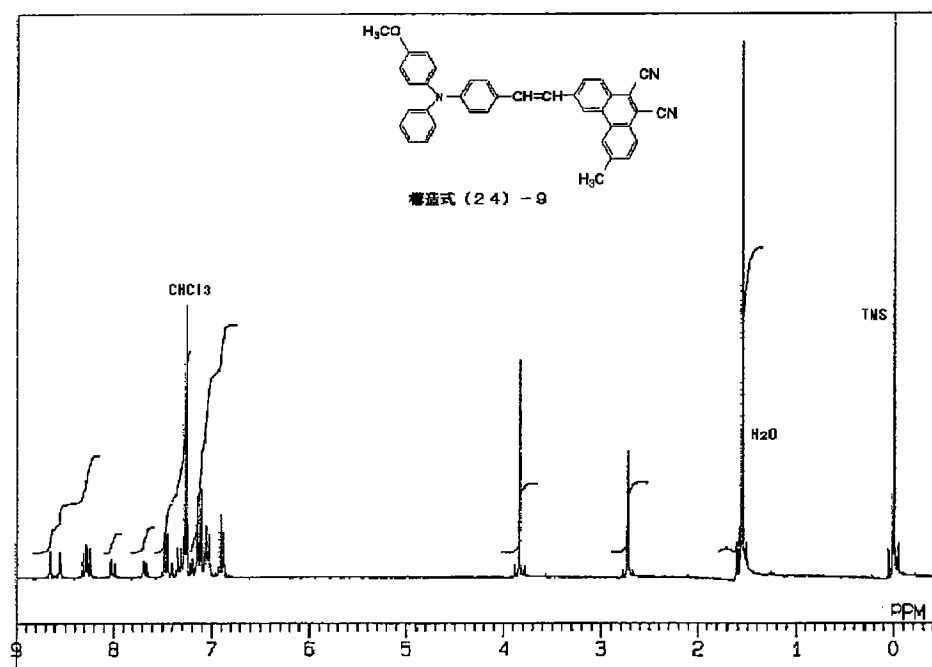




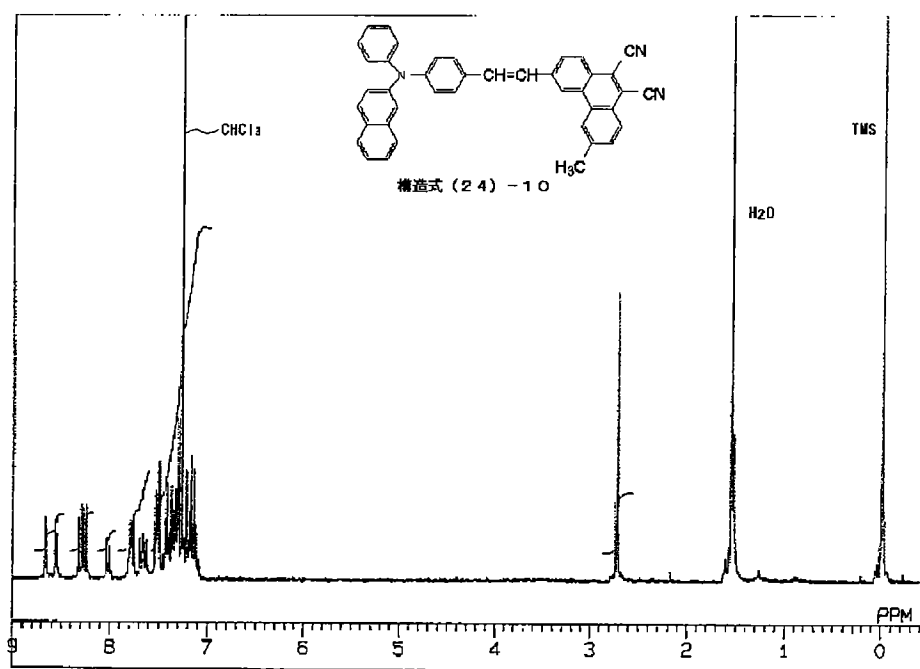
【図 4】



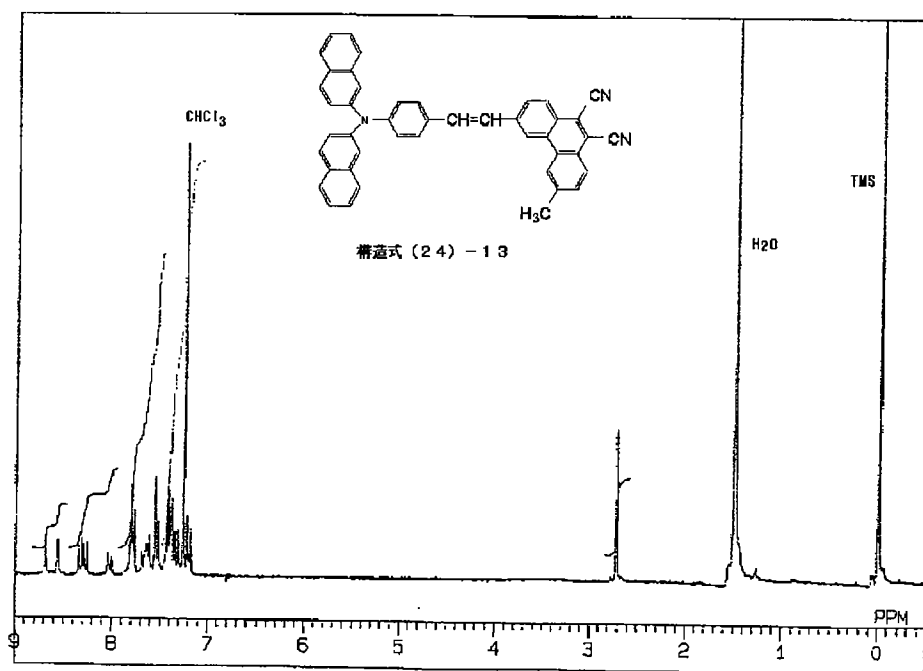
【図 5】



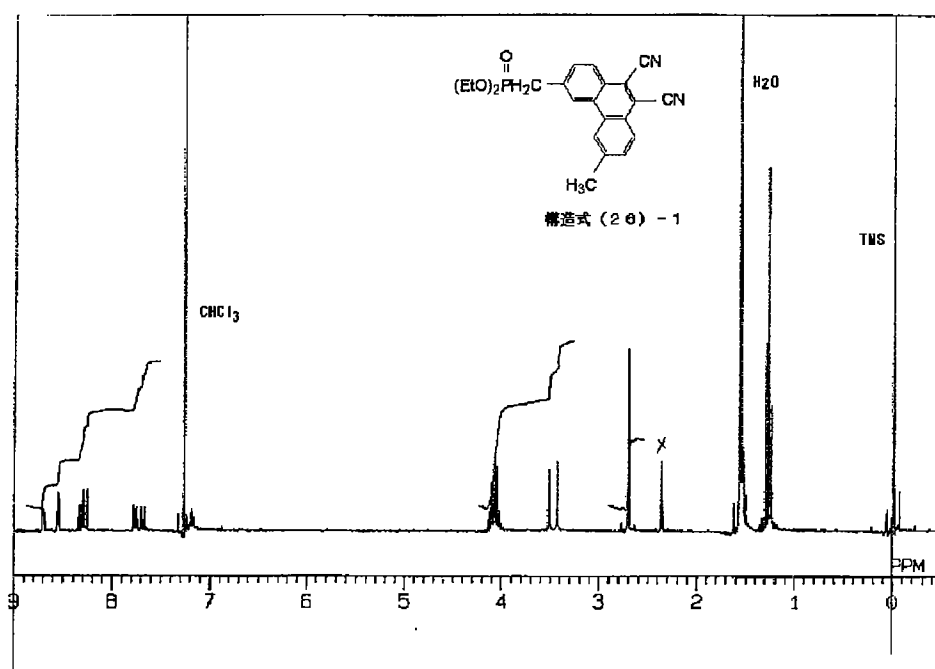
【図6】



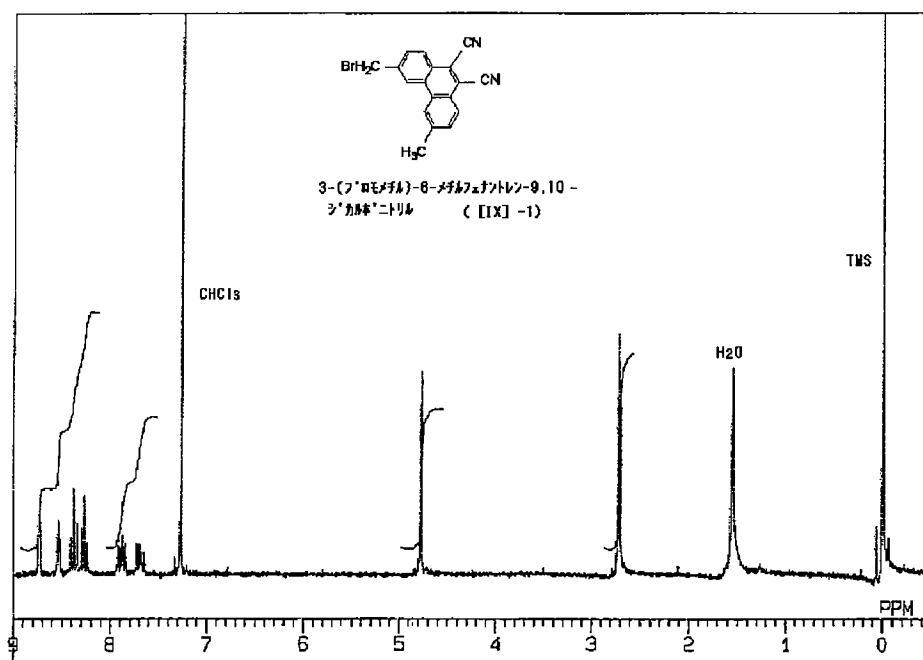
【図7】



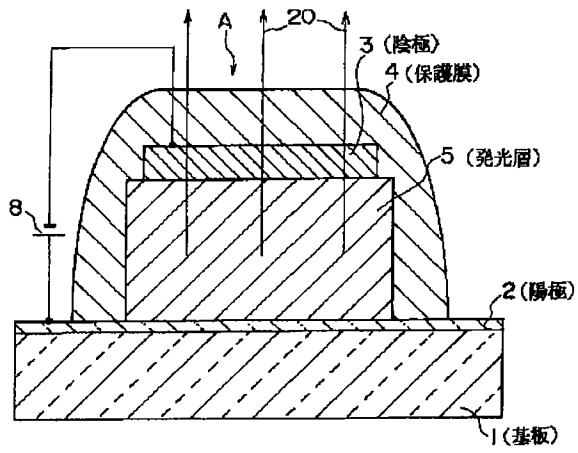
【図 8】



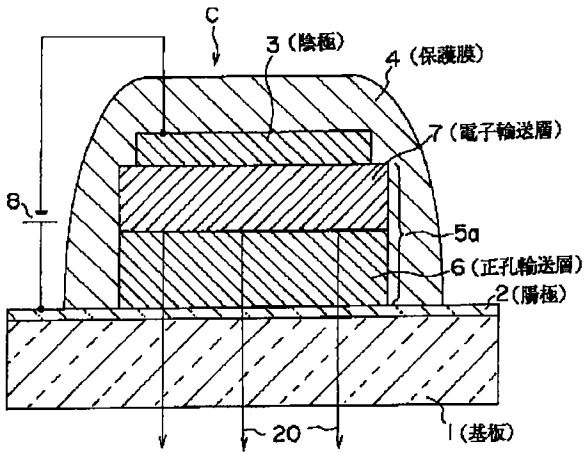
【図 9】



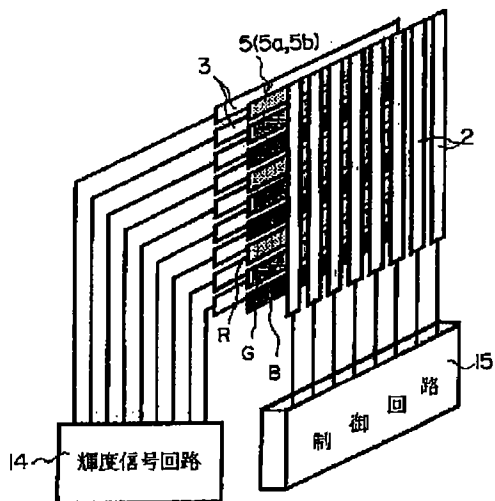
【図10】



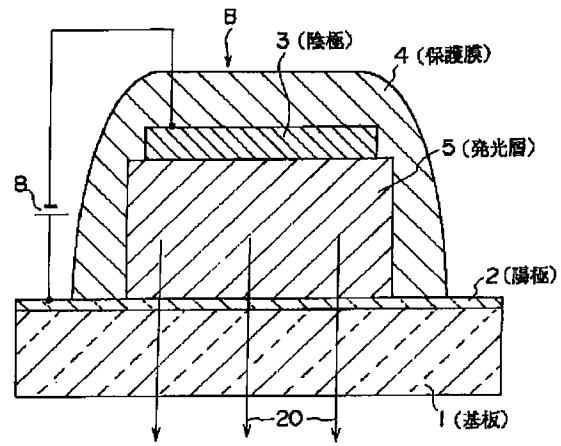
【図12】



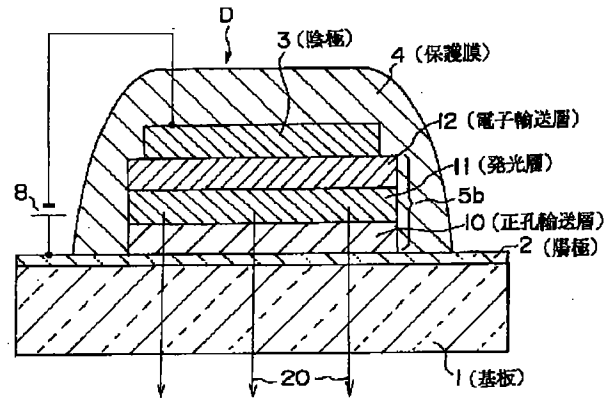
【図14】



【図11】



【図13】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード(参考)
C 0 7 F 9/54		C 0 7 F 9/54	
C 0 9 K 11/06	6 2 5	C 0 9 K 11/06	6 2 5
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B

(72)発明者 田村 眞一郎  
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ  
ー株式会社内

F ターム(参考) 3K007 AB02 AB04 CA01 DA02 EB00  
FA01  
4H006 AA01 AA02 AB84 AB92 AC22  
AC30 BB12 BB14 BB15 BB18  
BB19 BB20 BB24 BB25 BB31  
BE10 BE12 QN30  
4H050 AA01 AA02 AB84 WA11 WA24  
WA26 WA29  
4H056 DA02 DB10 DC01 FA10

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-226722

(43)Date of publication of application : 14.08.2002

---

(51)Int.Cl. C09B 57/00

C07C253/30

C07C255/52

C07C255/58

C07F 9/40

C07F 9/54

C09K 11/06

H05B 33/14

-----  
(21)Application number : 2001-021006 (71)Applicant : SONY CORP

(22)Date of filing : 30.01.2001 (72)Inventor : ICHIMURA MARI

ISHIBASHI TADASHI

TAMURA SHINICHIRO

-----  
(54) AMINOSTYRYLPHENANTHRENE COMPOUND AND INTERMEDIATE IN  
ITS SYNTHESIS, AND METHOD OF PRODUCTION THEREOF

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic luminescent material which stably emits red light with high luminance, and a method of production thereof.

SOLUTION: The organic luminescent material comprises e.g. an aminostyrylphenanthrene compound represented by general formula (I) (wherein R<sub>2</sub> is an unsubstituted aryl group; R<sub>1</sub> is an aryl group which may have various substituents; and R<sub>3</sub> to R<sub>5</sub> are each H, a cyano group, a hydrocarbon group, or the like). It is produced by the condensation of a corresponding 4-(N,N-

diaryl amino)benzaldehyde with a phosphonic ester or phosphonium.

-----  
LEGAL STATUS [Date of request for examination] 06.12.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

**\* NOTICES \***

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not



reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

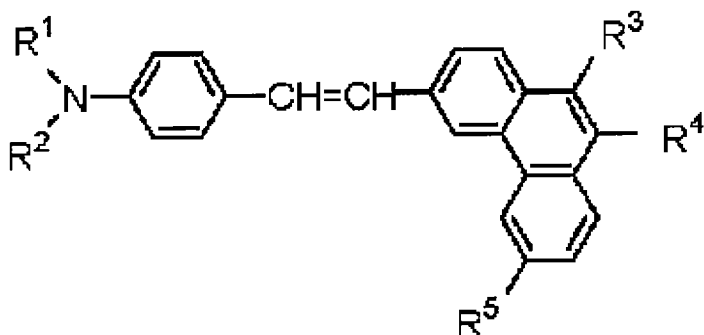
## CLAIMS

---

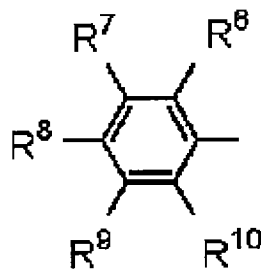
[Claim(s)]

[Claim 1] The amino styryl phenanthrene compound shown by the following general formula [I], [II], [III], [IV], or [V].

[Formula 1] General formula [I] :



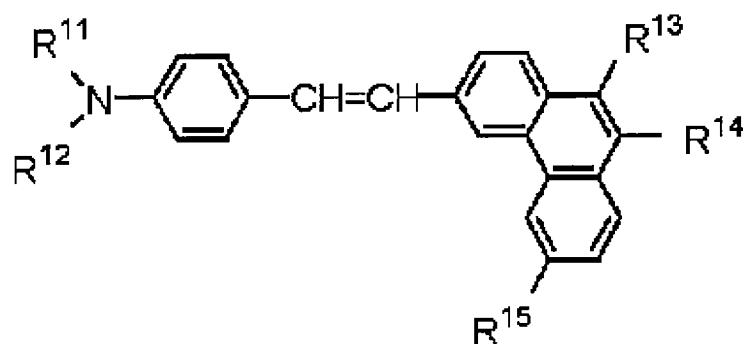
In [I], however said general formula [I], it is the aryl group as which R<sup>2</sup> is a non-permuted aryl group, and R<sup>1</sup> is expressed in the following general formula



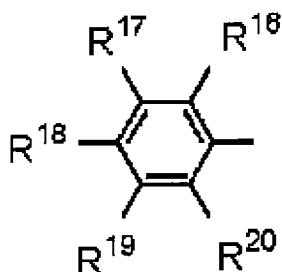
(1), and is [Formula 2]. General formula (1) :

(However, in said general formula (1), R6, R7, R8, R9, and R10 are radicals which are identical mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R3 and R4 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R5 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Formula 3] General formula [II] :

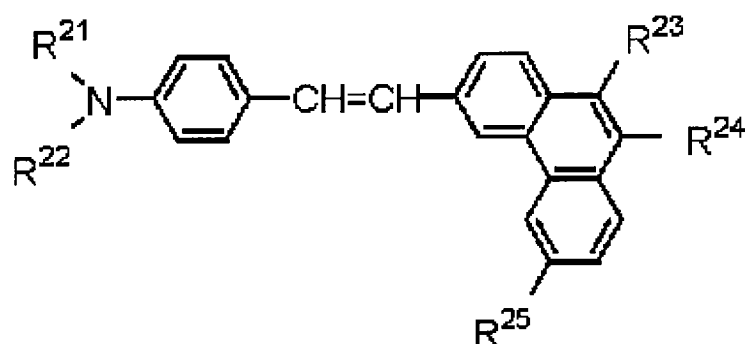


It is a radical which R11 and R12 are identities mutually in [I], however said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 4]. General formula (2) :



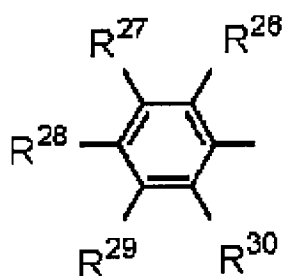
(However, in said general formula (2), R16, R17, R18, R19, and R20 are radicals which are identities mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R13 and R14 are radicals which are identities mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R15 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Formula 5] General formula [III] :

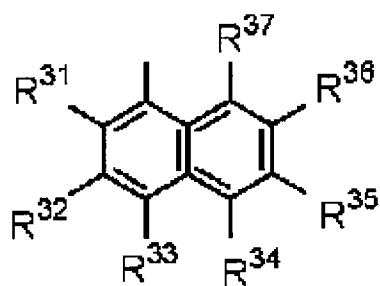


It is the aryl group as which  $\text{R}^{21}$  is expressed in the following general formula (3)

in [ , however said general formula [III], and is [Formula 6]. General formula (3) :

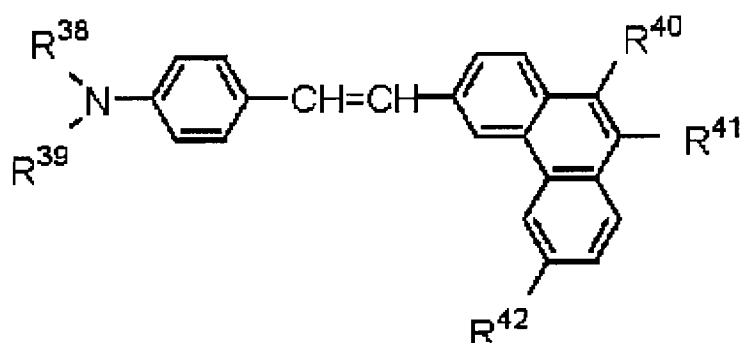


In (said general formula (3 [ however),  $\text{R}^{26}$ ,  $\text{R}^{27}$ ,  $\text{R}^{28}$ ,  $\text{R}^{29}$ , and  $\text{R}^{30}$  are radicals which are identities mutually or are different, at least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a with a carbon numbers of one or more hydrocarbon oxy-radical, the with a carbon numbers of one or more hydrocarbon amino group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom.) and  $\text{R}^{22}$  are aryl groups expressed with the following general formula (4), and are [Formula 7] General formula (4) :



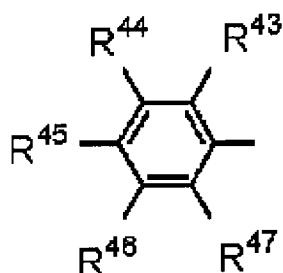
(However, in said general formula (4), R<sup>31</sup>, R<sup>32</sup>, R<sup>33</sup>, R<sup>34</sup>, R<sup>35</sup>, R<sup>36</sup>, and R<sup>37</sup> are radicals which are identical mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R<sup>23</sup> and R<sup>24</sup> are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R<sup>25</sup> is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Formula 8] General formula [IV] :

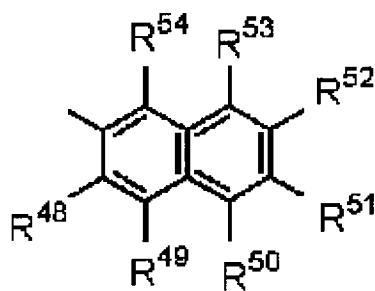


It is the aryl group as which R38 is expressed in the following general formula (5)

in [I], however said general formula [IV], and is [Formula 9]. General formula (5) :



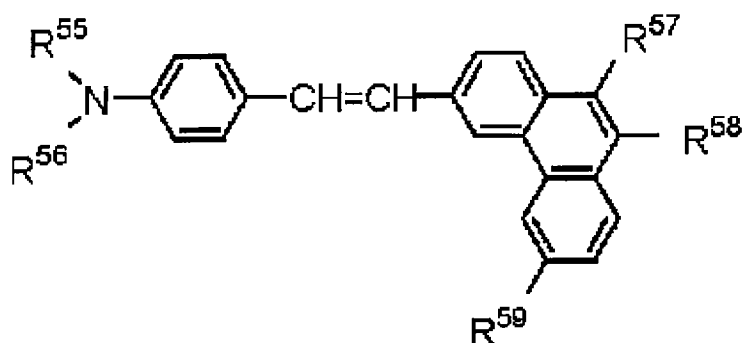
(However, in said general formula (5), R43, R44, R45, R46, and R47 are radicals which are identical mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R39 is an aryl group expressed with the following general formula (6), and



is [Formula 10]. General formula (6) :

(However, in said general formula (6), R<sub>48</sub>, R<sub>49</sub>, R<sub>50</sub>, R<sub>51</sub>, R<sub>52</sub>, R<sub>53</sub>, and R<sub>54</sub> are radicals which are identical mutually or are different.) at least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon oxy-radical, the hydrocarbon amino group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R<sub>40</sub> and R<sub>41</sub> are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R<sub>42</sub> is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

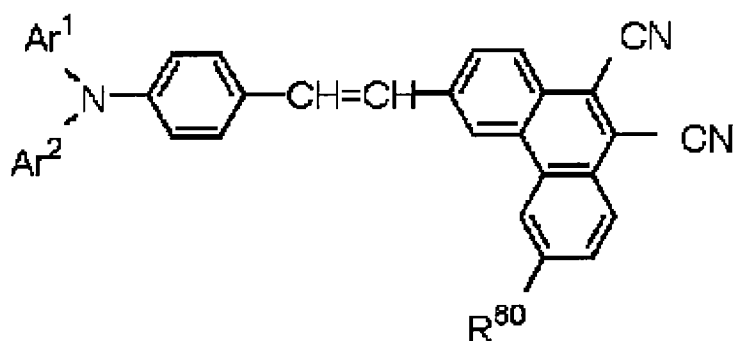
[Formula 11] General formula [V] :



It is a radical which R55 and R56 are identical mutually, or is different in [, however said general formula [V]. At least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R57 and R58 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, It is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R59 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ] [Claim 2] The amino styryl phenanthrene compound which is expressed with the following general formula (7) and which was indicated to claim 1.

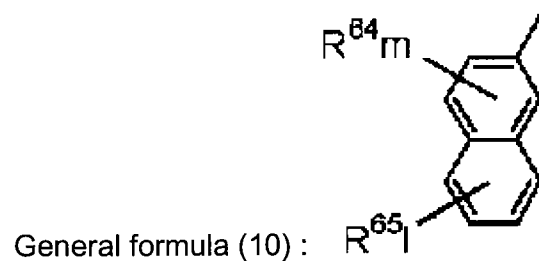
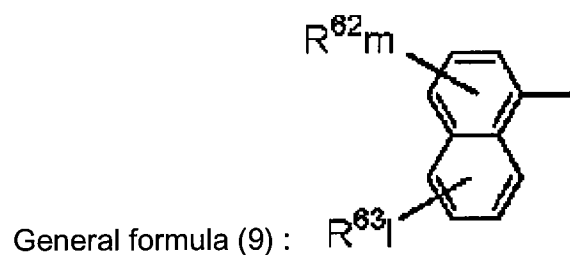
[Formula 12] General formula (7) :

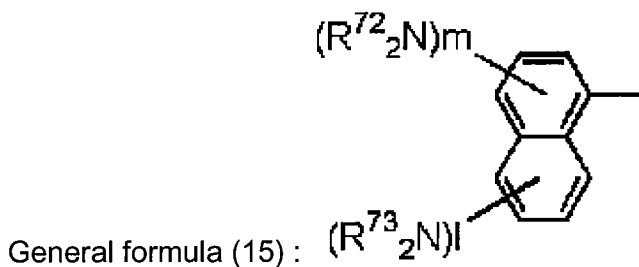
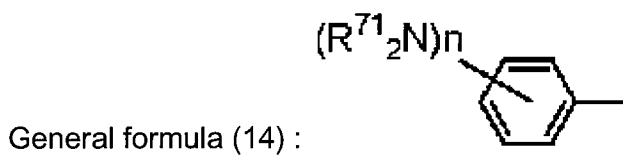
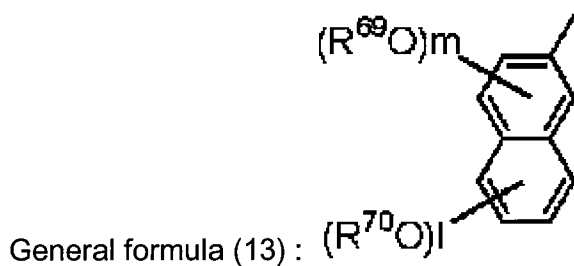
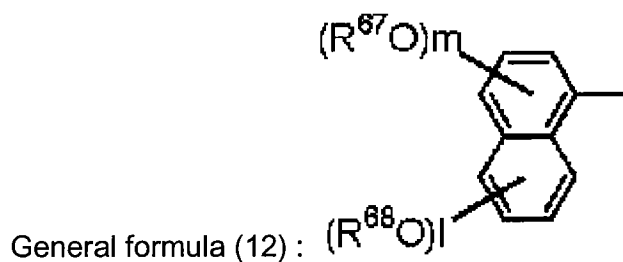
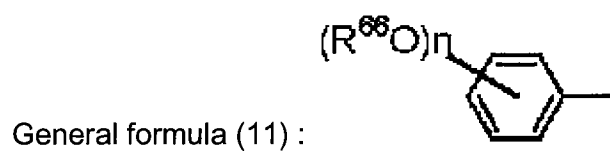


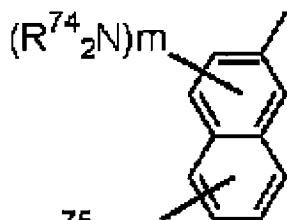


It is an aryl group in which Ar1 and Ar2 may have a substituent in [ , however said general formula (7), respectively and which is identical mutually or is different, is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (8), (9), (10), (11), (12), (13), (14), (15), and (16) when it has a

substituent, and is [Formula 13]. General formula (8) :







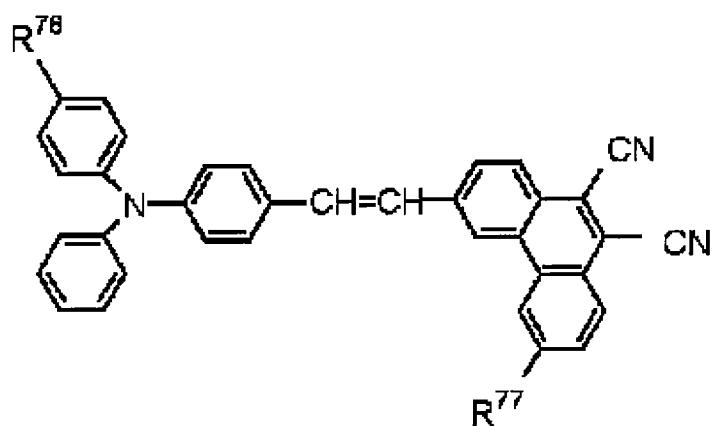
General formula (16) :  $(R^{75}_2N)l$

(However, it sets to said general formula (8), (9), (10), (11), (12), (13), (14), (15), and (16).) R61, R62, R63, R64, R65, R66, R67, R68, R69, R70, R71, R72, R73, R74, and R75 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually. n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-3. R60 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Claim 3] The amino styryl phenanthrene compound whose carbon numbers which form said hydrocarbon group of R61, R62, R63, R64, R65, R66, R67, R68, R69, R70, R71, R72, R73, R74, and R75 are 1-6 and which was indicated to claim 2.

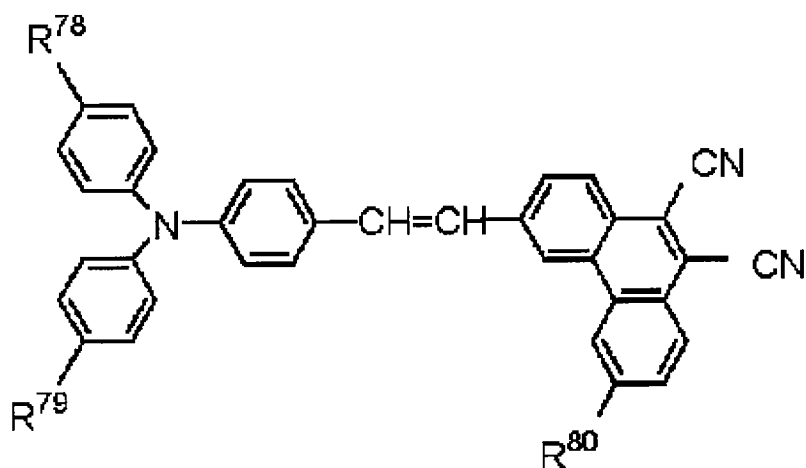
[Claim 4] The amino styryl phenanthrene compound which is expressed with the following general formula (17), (18), (19), (20), (21), (22), or (23) and which was indicated to claim 2.

[Formula 14] General formula (17) :



(However, in said general formula (17), R76 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R77 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

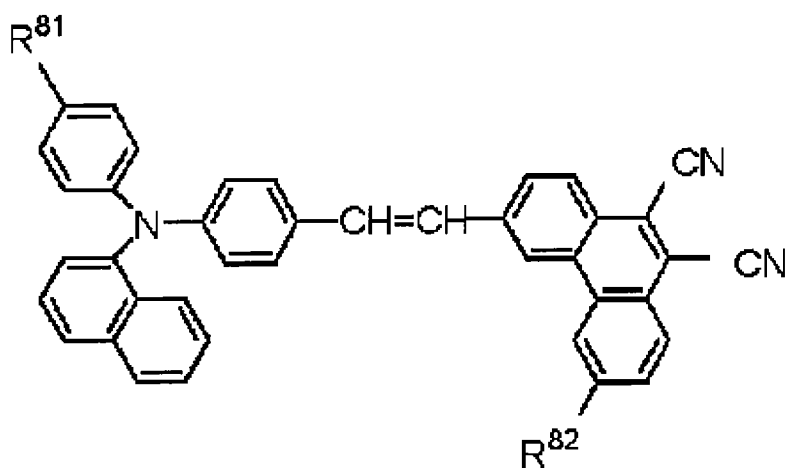
[Formula 15] General formula (18) :



(However, in said general formula (18), R78 and R79 are the aryl groups which

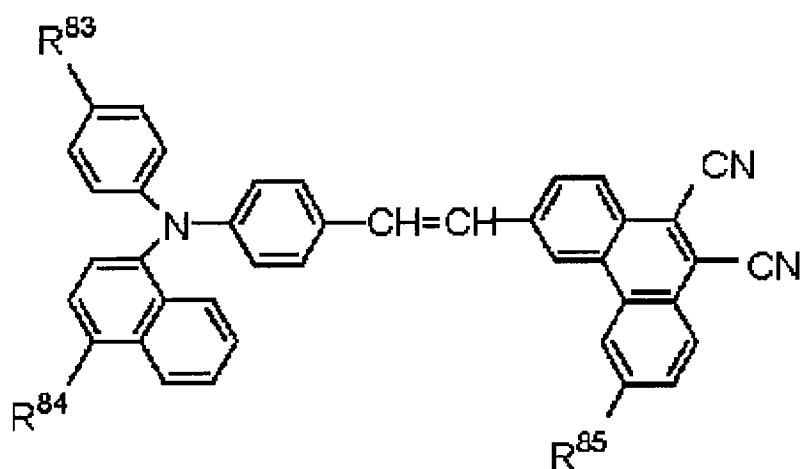
may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R80 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 16] General formula (19) :



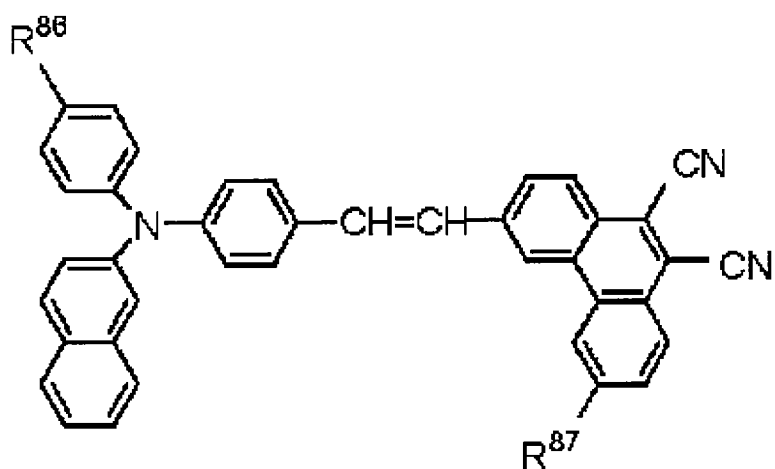
(However, in said general formula (19), R81 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R82 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 17] General formula (20) :



(However, in said general formula (20), R83 and R84 are the aryl groups which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R85 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

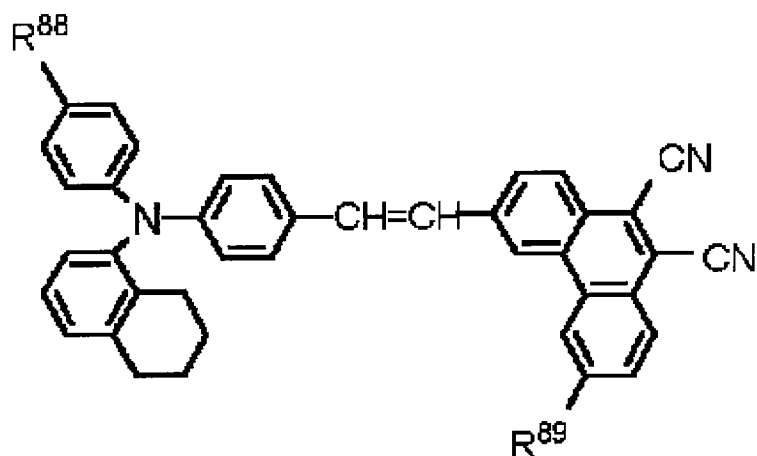
[Formula 18] General formula (21) :



(However, in said general formula (21), R86 is the aryl group which may have

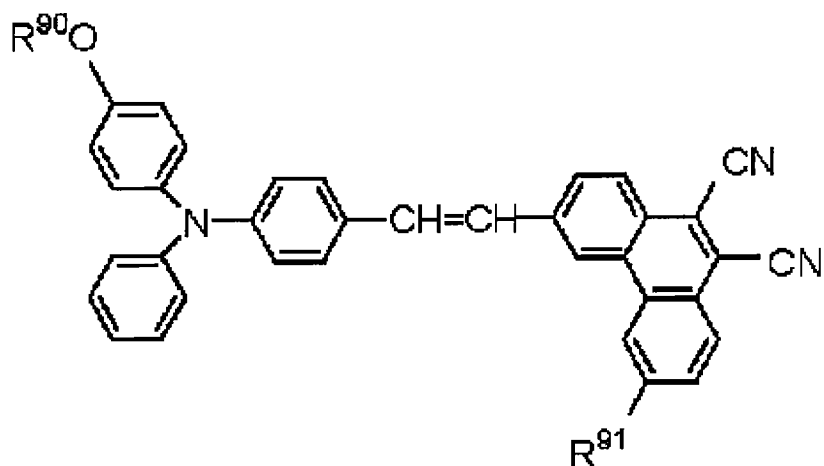
the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R87 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 19] General formula (22) :



(However, in said general formula (22), R88 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R89 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 20] General formula (23) :

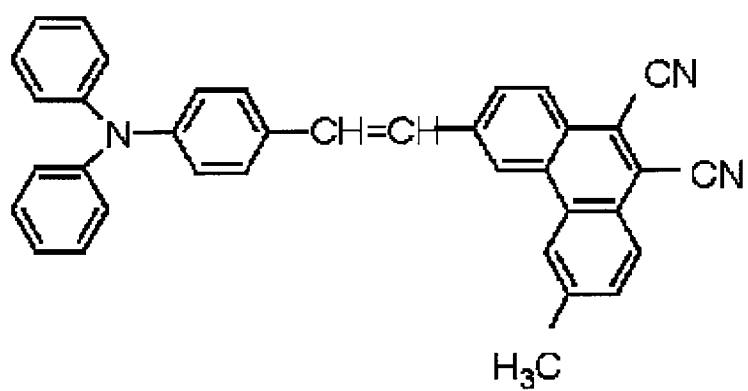


(However, in said general formula (23), R90 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R91 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

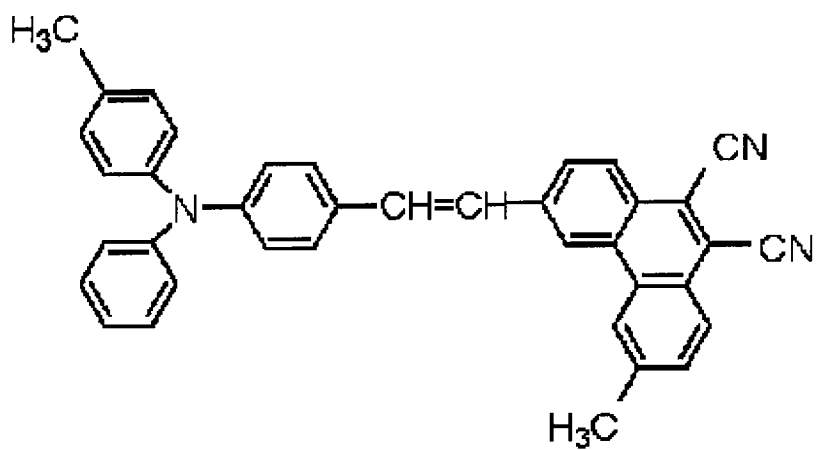
[Claim 5] following structure-expression (24)-1 and (24) -2, (24)-3, (24)-4, and (24) -5, (24)-6, (24)-7, and (24) -8, (24)-9, (24)-10, and (24) -- the amino styryl phenanthrene compound which is expressed with -11, (24)-12, and (24)-13 and which be indicated to claim 2.

[Formula 21] Structure expression (24) -1 :

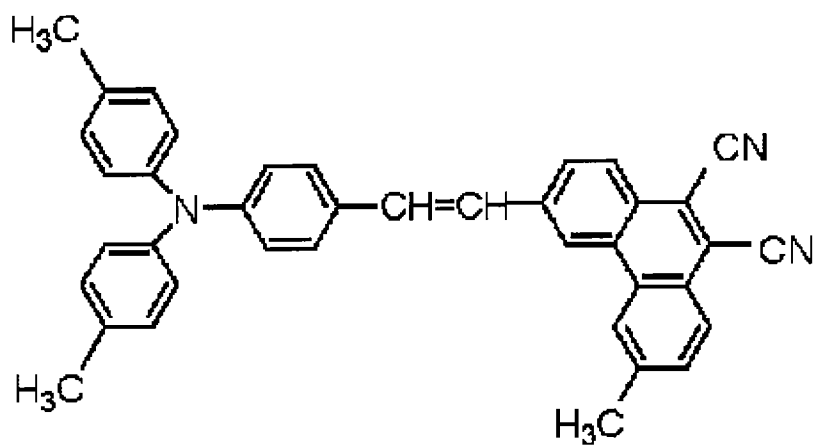




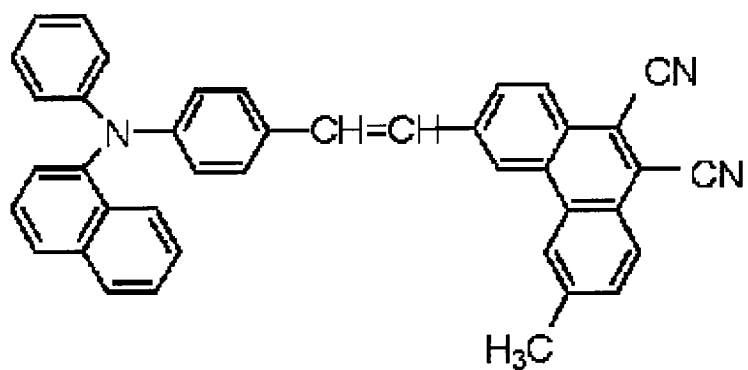
Structure                      expression                      (24)                      -2                      :



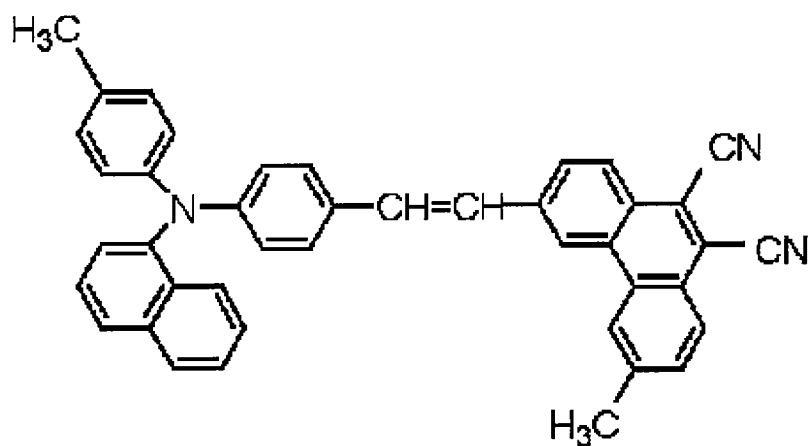
Structure                      expression                      (24)                      -3                      :



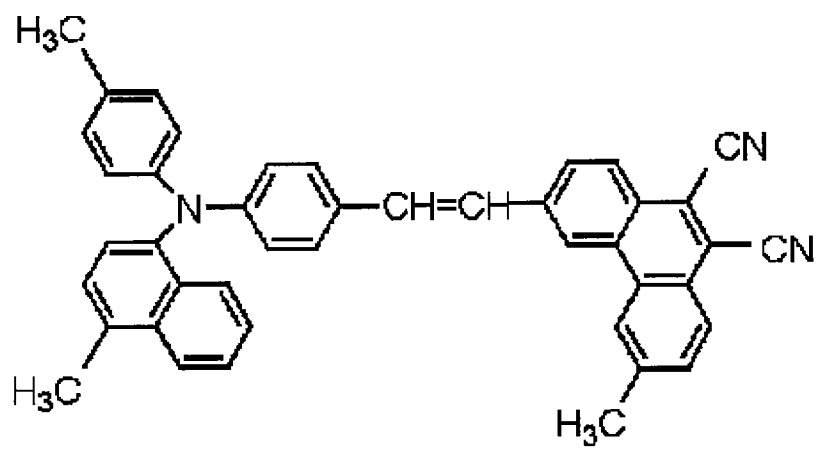
Structure                      expression                      (24)                      -4                      :



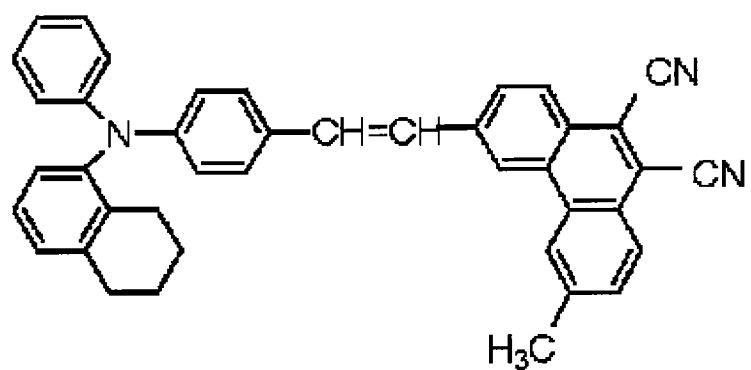
Structure                      expression                      (24)                      -5                      :



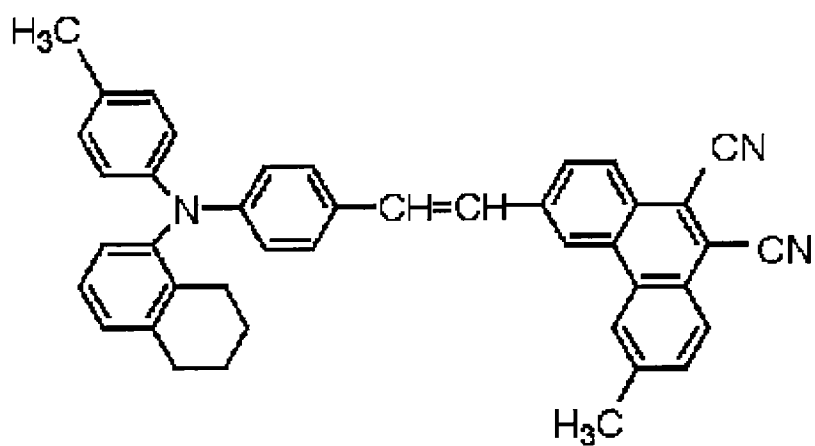
Structure                      expression                      (24)                      -6                      :



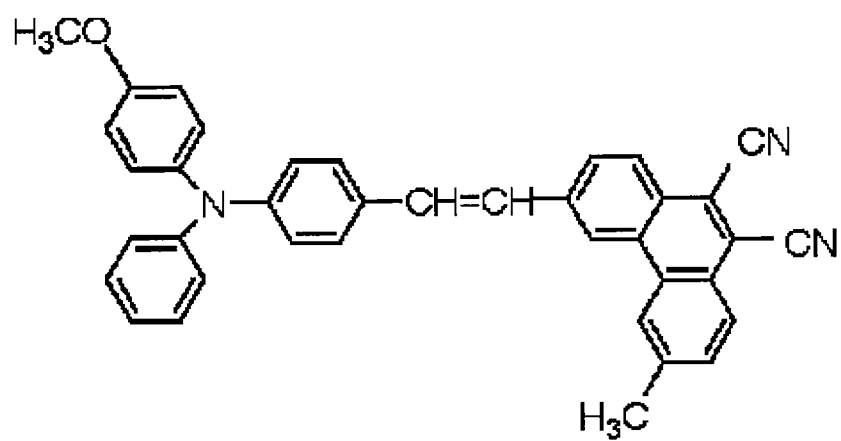
Structure                      expression                      (24)                      -7                      :



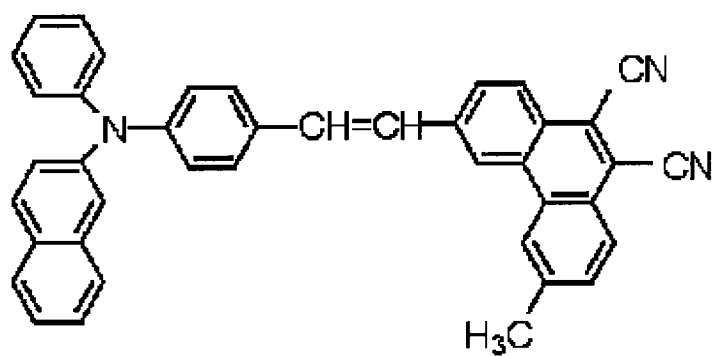
Structure                      expression                      (24)                      -8                      :



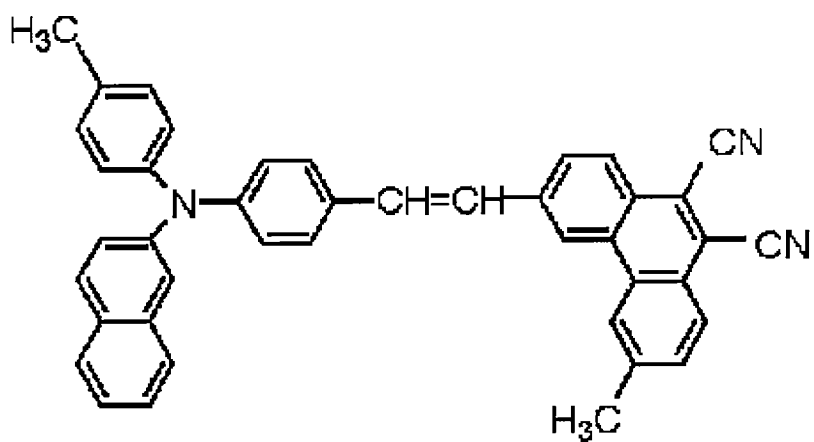
Structure                      expression                      (24)                      -9                      :



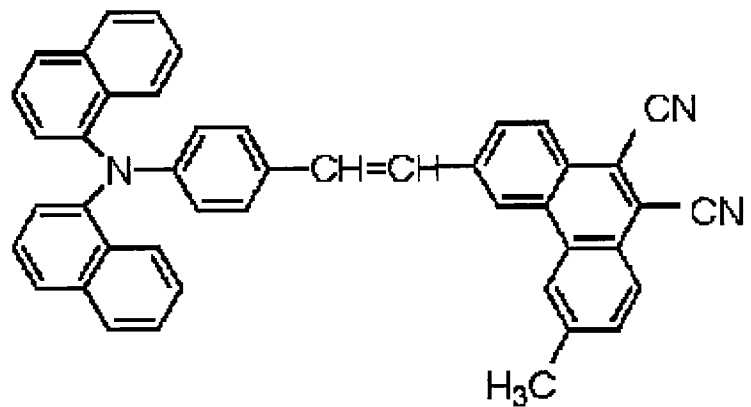
Structure                      expression                      (24)                      -10                      :



Structure                      expression                      (24)                      -11                      :



Structure                      expression                      (24)                      -12                      :



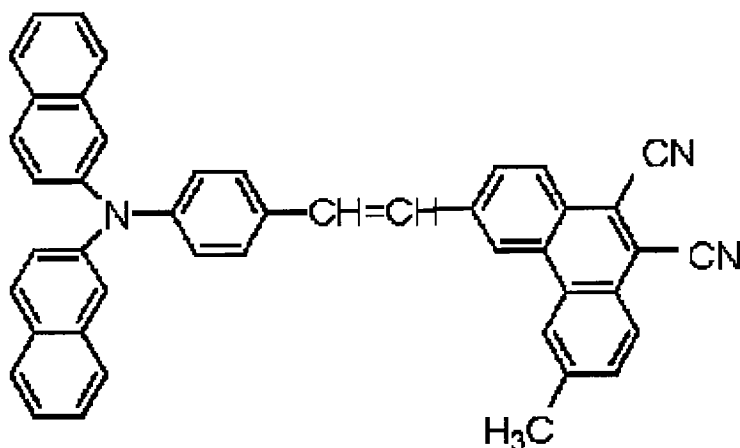
Structure

expression

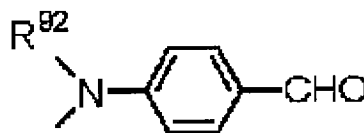
(24)

-13

:



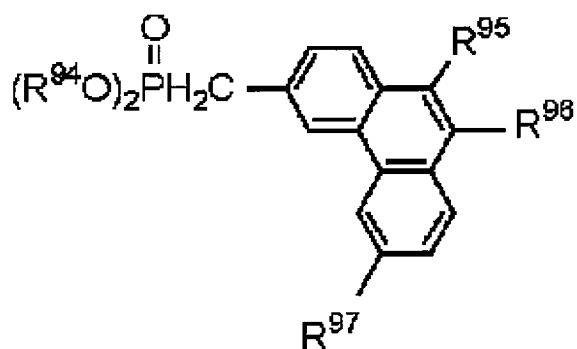
[Claim 6] The manufacture approach of an amino styryl phenanthrene compound of obtaining the amino styryl phenanthrene compound expressed with the following general formula [I], [II], [III], [IV], or [V] by carrying out condensation of the phosphonium and; which are expressed with the phosphonate and/or the following general formula [VIII] which are expressed with 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula [VI], and the; following general formula [VII].



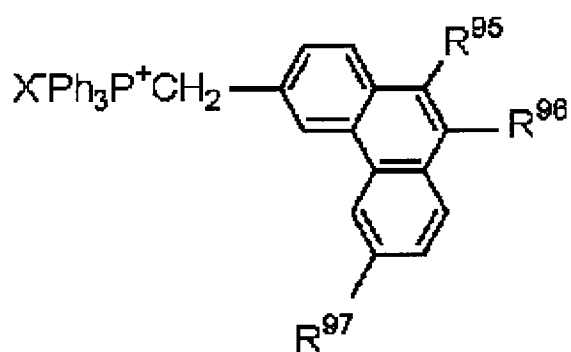
[Formula 22] General formula [VI] :  $R^{92}$

(However, in said general formula [VI],  $R^{92}$  and  $R^{93}$  are the aryl groups equivalent to following  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^{11}$ ,  $R^{12}$ ,  $R^{21}$ ,  $R^{22}$ ,  $R^{38}$ ,  $R^{39}$  and  $R^{55}$ , or  $R^{56}$ ,

respectively.)



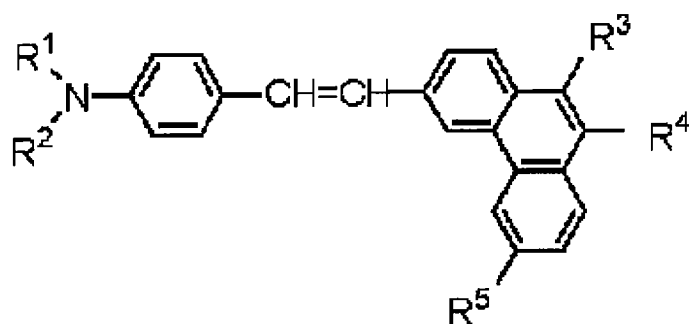
[Formula 23] General formula [VII] :



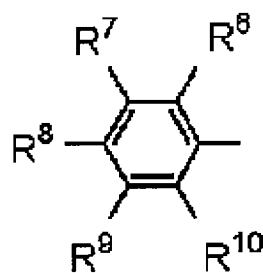
General formula [VIII] :

(However, in said general formula [VII] and [VIII],  $R^{94}$  is a hydrocarbon group,  $R^{95}$  and  $R^{96}$  are the radicals equivalent to following  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^{13}$ ,  $R^{14}$ ,  $R^{23}$ ,  $R^{24}$ ,  $R^{40}$ ,  $R^{41}$  and  $R^{57}$ , or  $R^{58}$ , respectively,  $R^{97}$  is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and X is a halogen atom.)

[Formula 24] General formula [I] :



In [1], however said general formula [I], it is the aryl group as which R2 is a non-permuted aryl group, and R1 is expressed in the following general formula

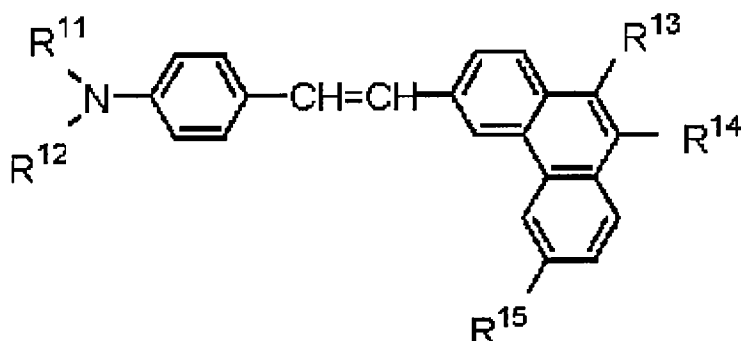


(1), and is [Formula 25]. General formula (1) :

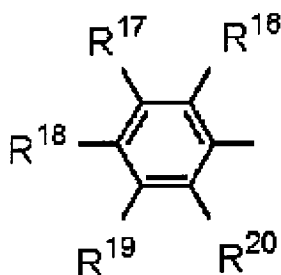
(However, in said general formula (1), R6, R7, R8, R9, and R10 are radicals which are identical mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R3 and R4 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl

radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R5 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Formula 26] General formula [II] :



It is a radical which R11 and R12 are identities mutually in [I], however said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 27]. General formula (2) :

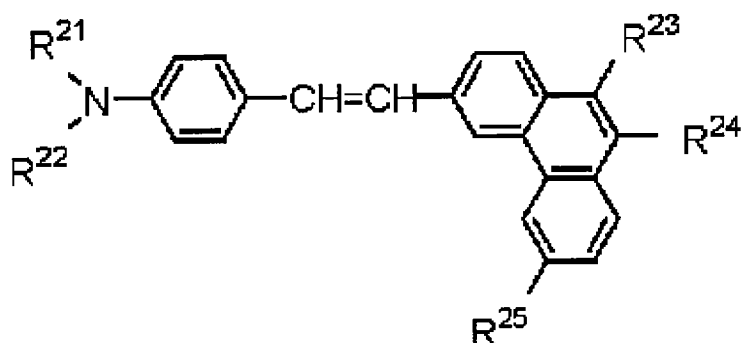


(However, in said general formula (2), R16, R17, R18, R19, and R20 are radicals which are identities mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation

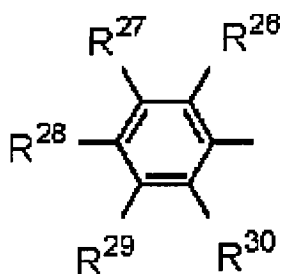


or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R13 and R14 are radicals which are identitas mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R15 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

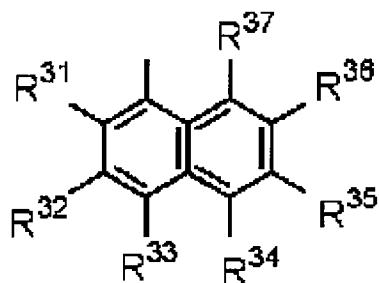
[Formula 28] General formula [III] :



It is the aryl group as which R21 is expressed in the following general formula (3) in [, however said general formula [III], and is [Formula 29]. General formula (3) :



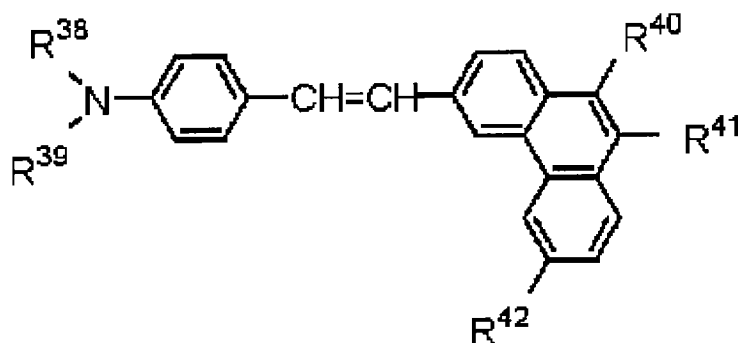
In (said general formula (3) [ however), R<sup>26</sup>, R<sup>27</sup>, R<sup>28</sup>, R<sup>29</sup>, and R<sup>30</sup> are radicals which are identical mutually or are different, at least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a with a carbon numbers of one or more hydrocarbon oxy-radical, the with a carbon numbers of one or more hydrocarbon amino group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom.) and R<sup>22</sup> are aryl groups expressed with the following general formula (4), and are [Formula 30] General formula (4) :



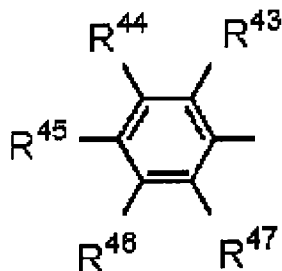
(However, in said general formula (4), R<sup>31</sup>, R<sup>32</sup>, R<sup>33</sup>, R<sup>34</sup>, R<sup>35</sup>, R<sup>36</sup>, and R<sup>37</sup> are radicals which are identical mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or

more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R23 and R24 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R25 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

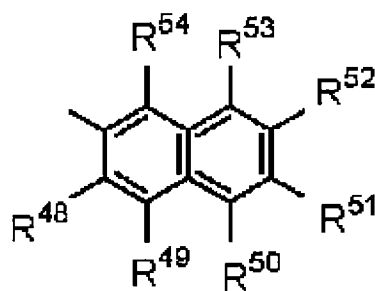
[Formula 31] General formula [IV] :



It is the aryl group as which R38 is expressed in the following general formula (5) in [ , however said general formula [IV], and is [Formula 32]. General formula (5) :



(However, in said general formula (5), R<sup>43</sup>, R<sup>44</sup>, R<sup>45</sup>, R<sup>46</sup>, and R<sup>47</sup> are radicals which are identical mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R<sup>39</sup> is an aryl group expressed with the following general formula (6), and

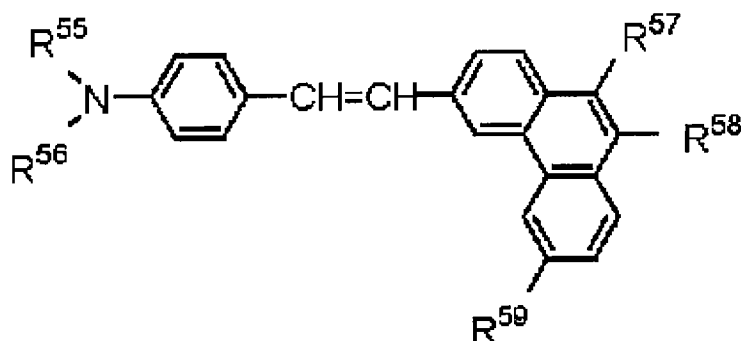


is [Formula 33]. General formula (6) :

(However, in said general formula (6), R<sup>48</sup>, R<sup>49</sup>, R<sup>50</sup>, R<sup>51</sup>, R<sup>52</sup>, R<sup>53</sup>, and R<sup>54</sup> are radicals which are identical mutually or are different.) at least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or

more saturation or partial saturation, a hydrocarbon oxy-radical, the hydrocarbon amino group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R40 and R41 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R42 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

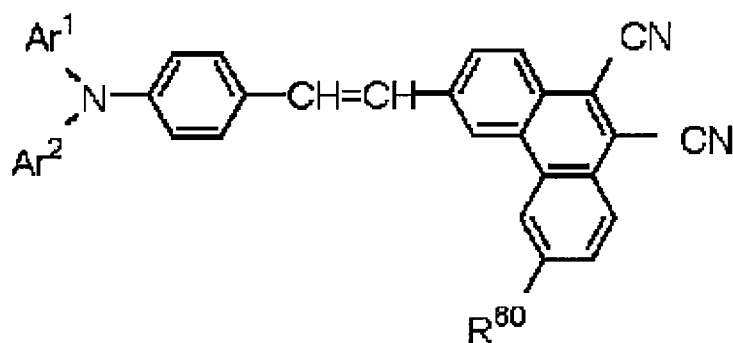
[Formula 34] General formula [V] :



It is a radical which R55 and R56 are identical mutually, or is different in [, however said general formula [V]. At least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R57 and R58 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, It is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a

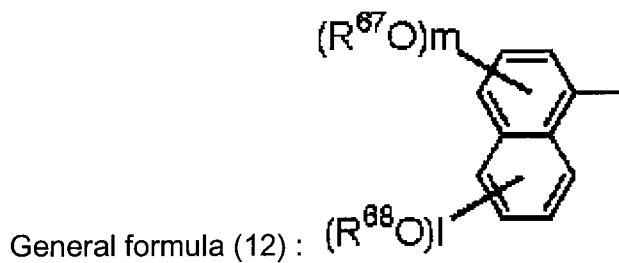
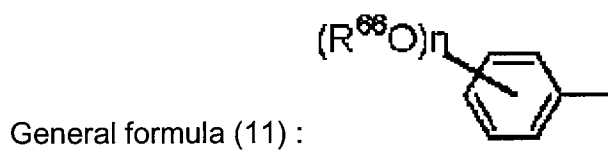
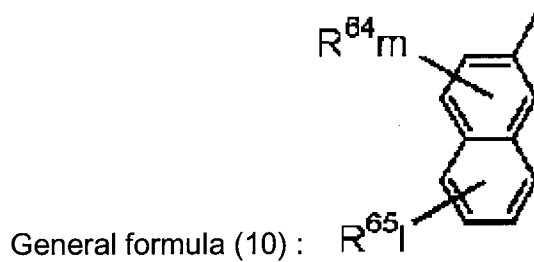
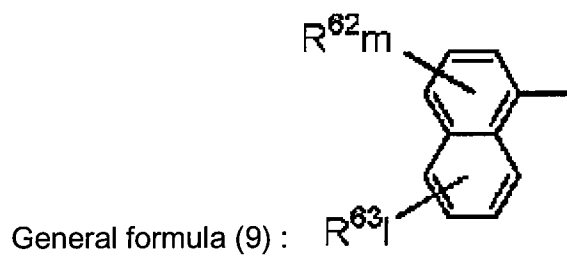
nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R59 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ] [Claim 7] The manufacture approach of the amino styryl phenanthrene compound indicated to claim 6 to which the Wittig HONA (Wittig-Horner) reaction or the Wittig (Wittig) reaction performs said condensation, a carbanion is made to generate by processing said phosphonate and/or said phosphonium by the base in a solvent, and condensation of this carbanion and said 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde is carried out.

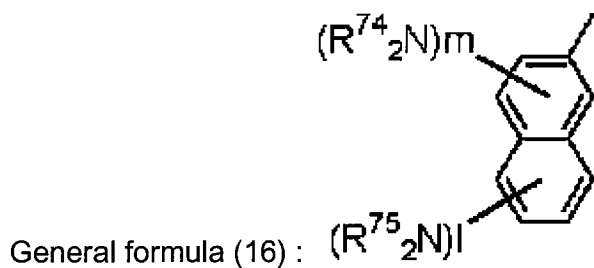
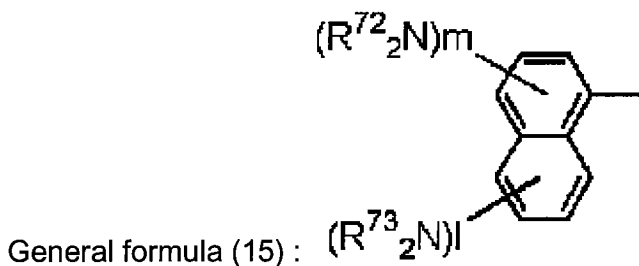
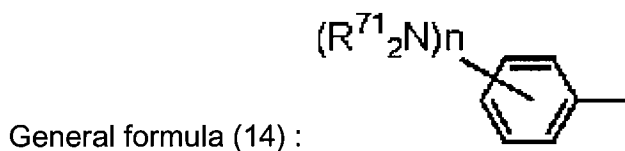
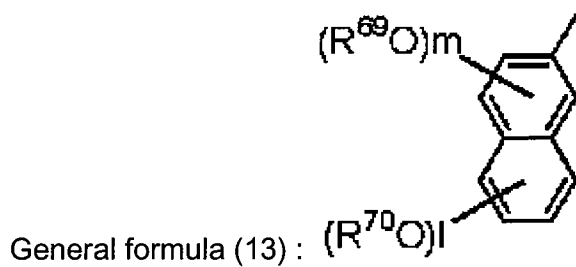
[Claim 8] It faces obtaining the amino styryl phenanthrene compound expressed with the following general formula (7), and is [Formula 35]. General formula (7) :



It is an aryl group in which  $\text{Ar}^1$  and  $\text{Ar}^2$  may have a substituent in [, however said general formula (7), respectively and which is identical mutually or is different, is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (8), (9), (10), (11), (12), (13), (14), (15), and (16) when it has a

substituent, and is [Formula 36]. General formula (8) :

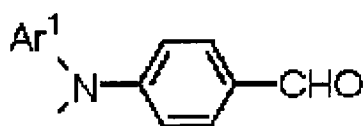




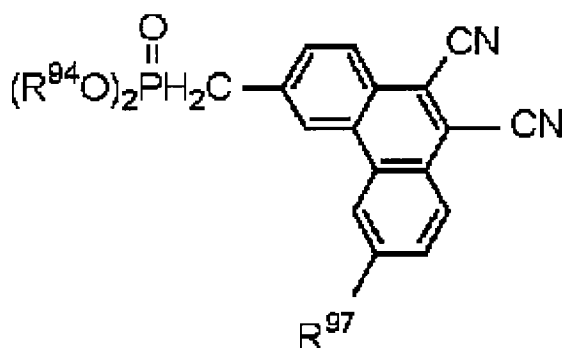
(However, it sets to said general formula (8), (9), (10), (11), (12), (13), (14), (15), and (16).) R61, R62, R63, R64, R65, R66, R67, R68, R69, R70, R71, R72, R73, R74, and R75 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually. n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and I is the integer of 0-3. R60 is the aryl group



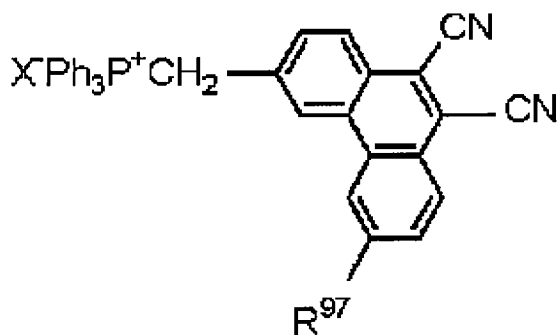
which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ] The manufacture approach of the amino styryl phenanthrene compound indicated to claim 6 of carrying out condensation of; to the phosphonium expressed with the phosphonate and/or the following general formula (27) which are expressed with 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula (25), and the; following general formula (26).



[Formula 37] General formula (25) :  $\text{Ar}^2$



General formula (26) :



General formula (27) :

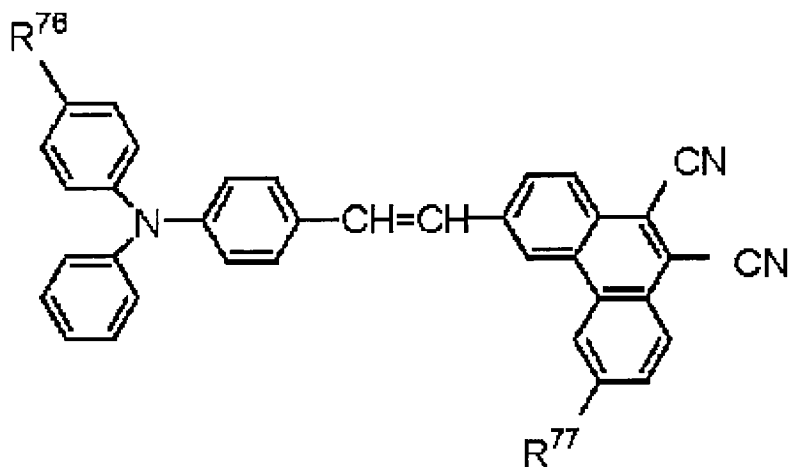
(However, in said general formula (25), (26), and (27), Ar1, Ar2, R94, R97, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 9] The manufacture approach of an amino styryl phenanthrene compound which makes said R94 the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 6.

[Claim 10] The manufacture approach of an amino styryl phenanthrene compound which sets to 1-6 the carbon number which forms said hydrocarbon of R61, R62, R63, R64, R65, R66, R67, R68, R69, R70, R71, R72, R73, R74, and R75 and which was indicated to claim 7.

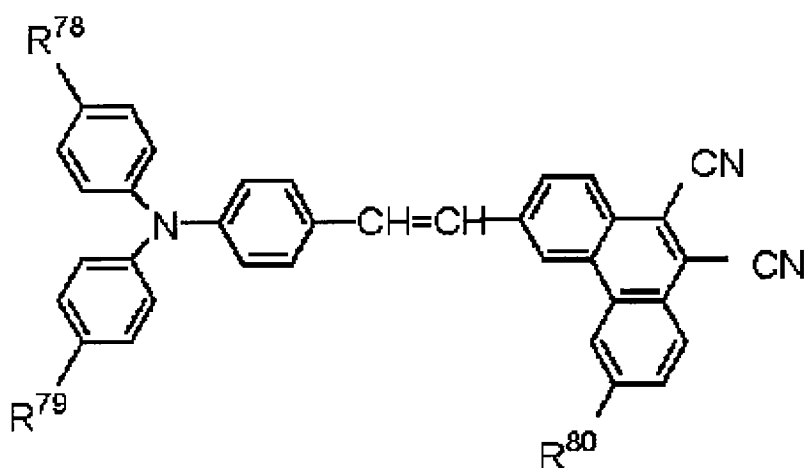
[Claim 11] The manufacture approach of the amino styryl phenanthrene compound indicated to claim 7 of obtaining the amino styryl phenanthrene compound expressed with the following general formula (17), (18), (19), (20), (21), (22), or (23).

[Formula 38] General formula (17) :



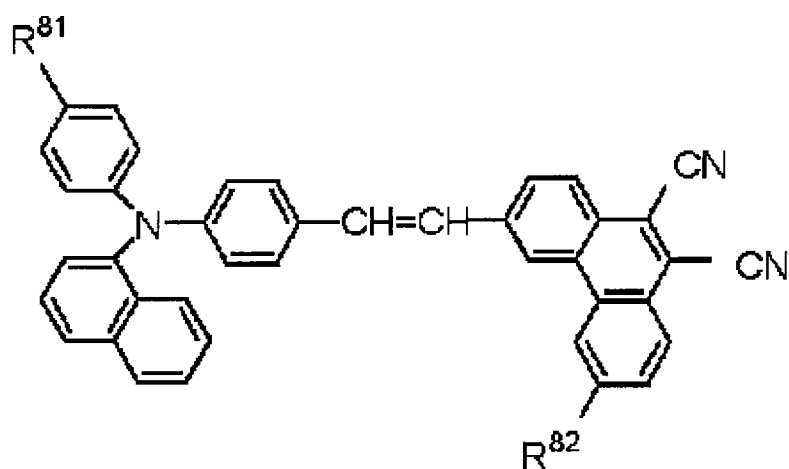
(However, in said general formula (17), R76 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R77 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 39] General formula (18) :



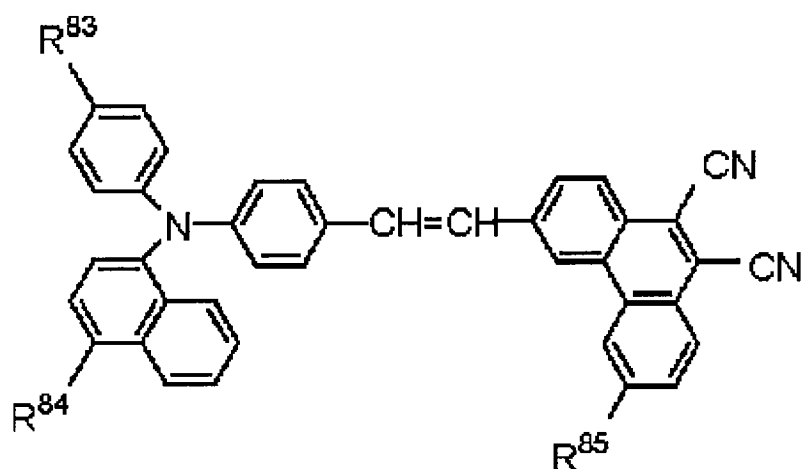
(However, in said general formula (18), R78 and R79 are the aryl groups which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R80 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 40] General formula (19) :



(However, in said general formula (19), R<sup>81</sup> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R<sup>82</sup> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

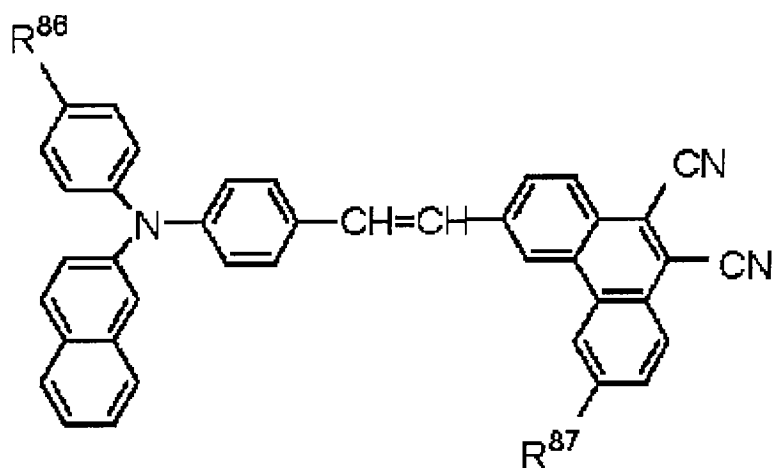
[Formula 41] General formula (20) :



(However, in said general formula (20), R<sup>83</sup> and R<sup>84</sup> are the aryl groups which

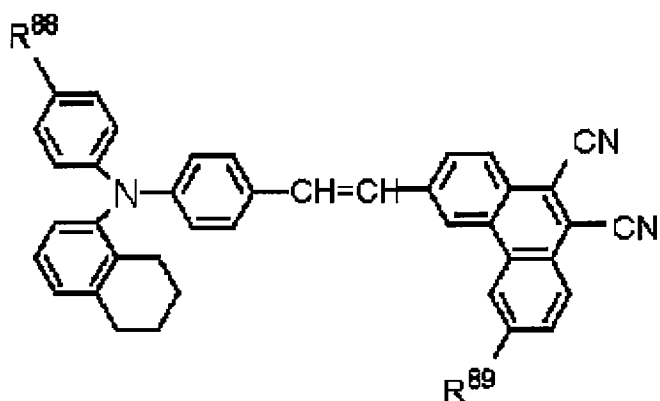
may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R85 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 42] General formula (21) :



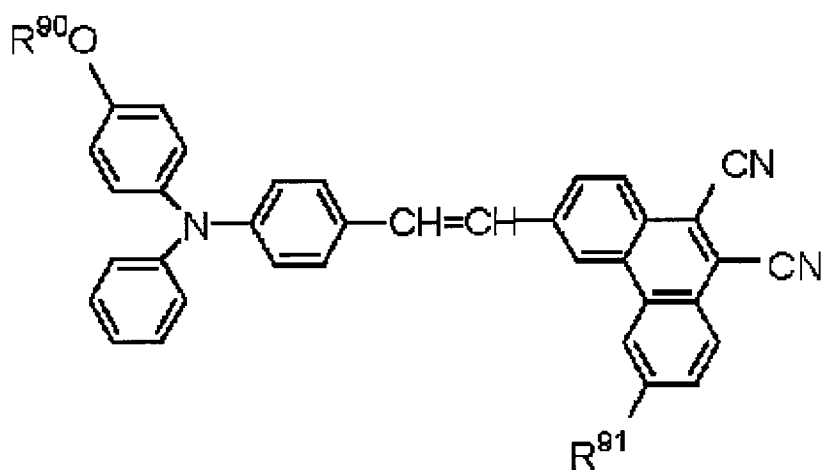
(However, in said general formula (21), R86 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R87 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 43] General formula (22) :



(However, in said general formula (22), R<sup>88</sup> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R<sup>89</sup> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 44] General formula (23) :

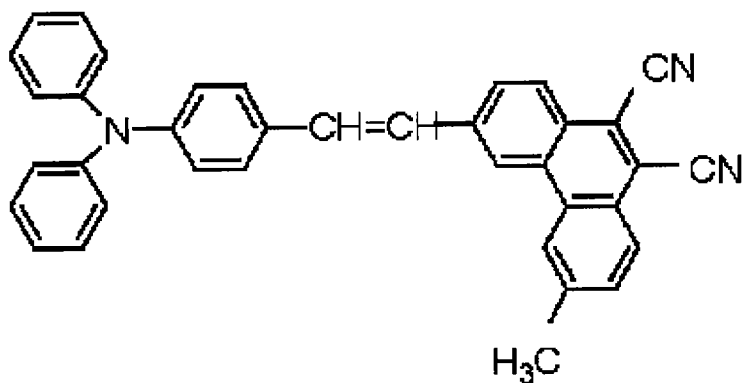


(However, in said general formula (23), R<sup>90</sup> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a

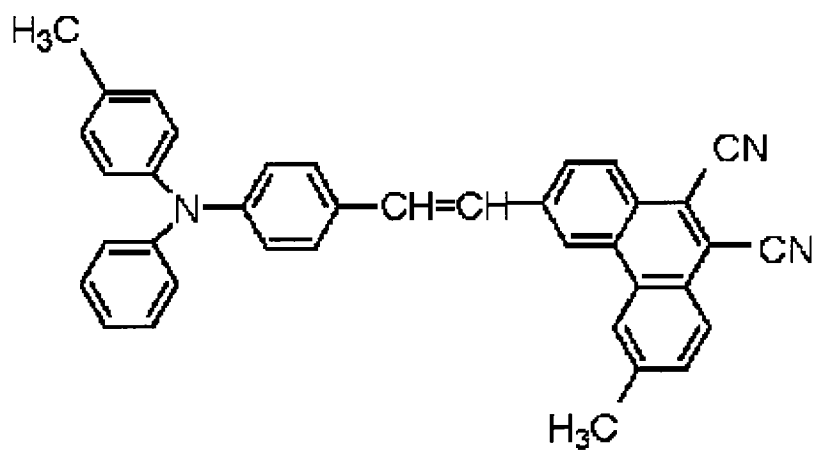
substituent, and R91 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Claim 12] The following structure expression (24) -1 and (24) -2, (24)-3, (24)-4, and (24) -5, (24)-6, (24)-7, and (24) -8, (24)-9, (24)-10, and (24) -- the amino styryl phenanthrene compound expressed with -11, (24)-12, and (24)-13 The manufacture approach of the amino styryl phenanthrene compound indicated to claim 7 to acquire.

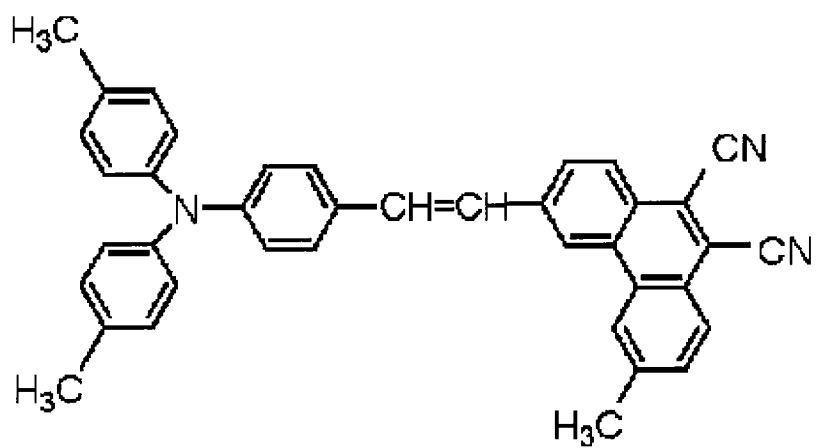
[Formula 45] Structure expression (24) -1 :



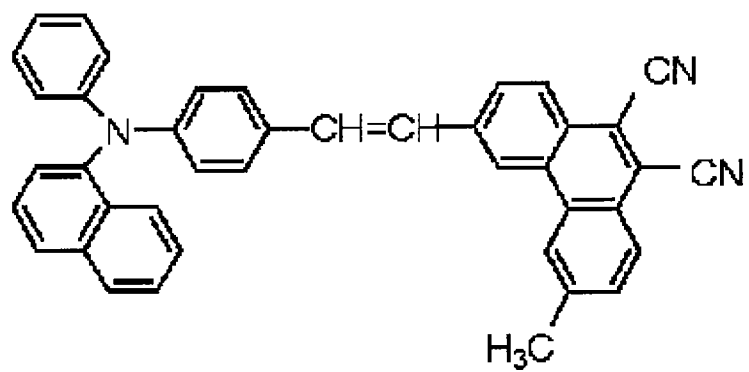
Structure expression (24) -2 :



Structure                      expression                      (24)                      -3                      :

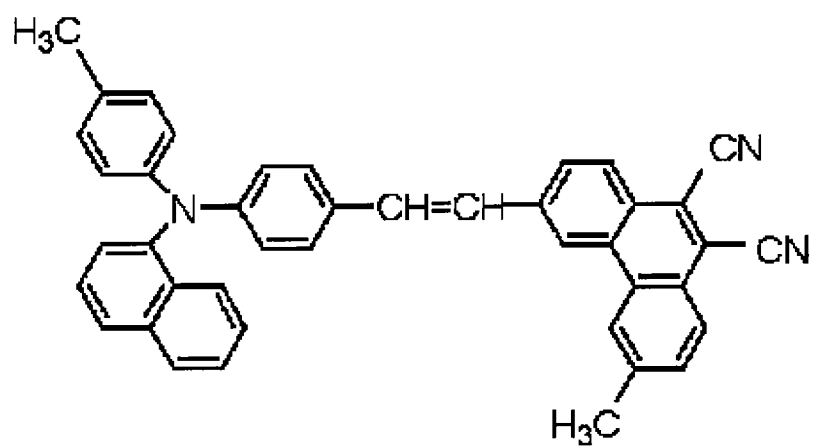


Structure                      expression                      (24)                      -4                      :

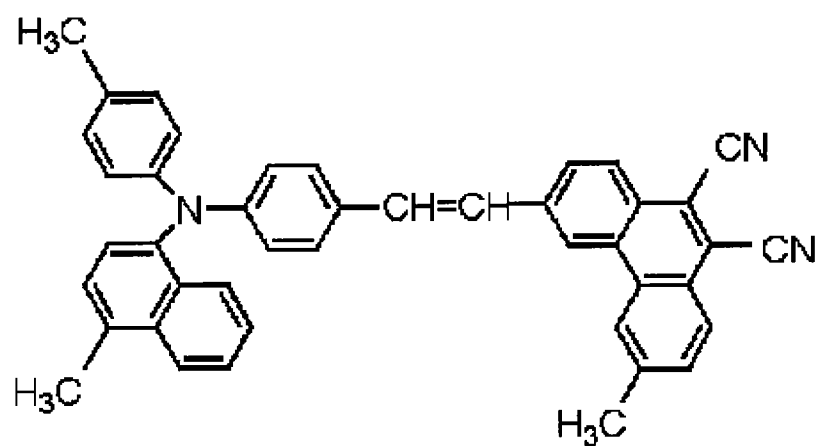


Structure                      expression                      (24)                      -5                      :

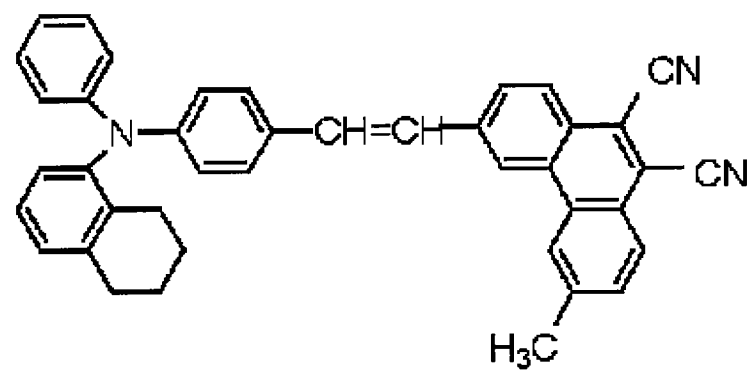




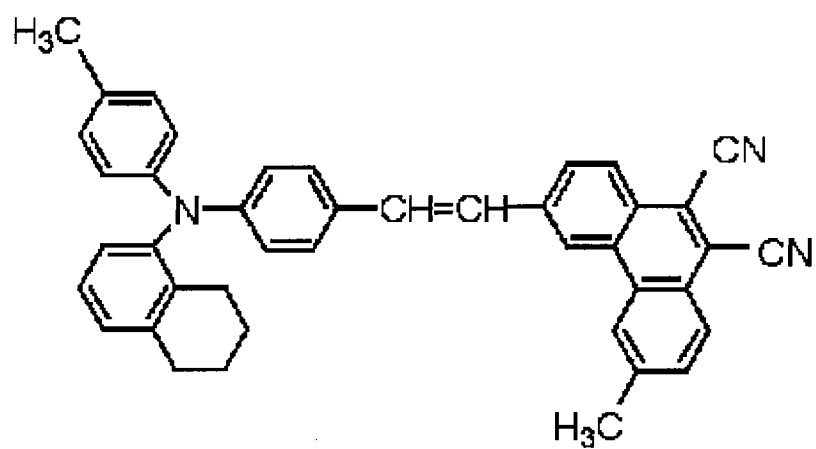
Structure expression (24) -6 :



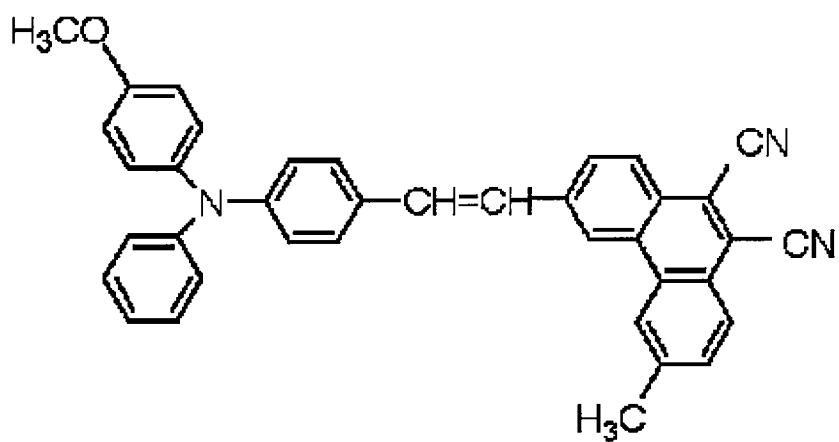
Structure expression (24) -7 :



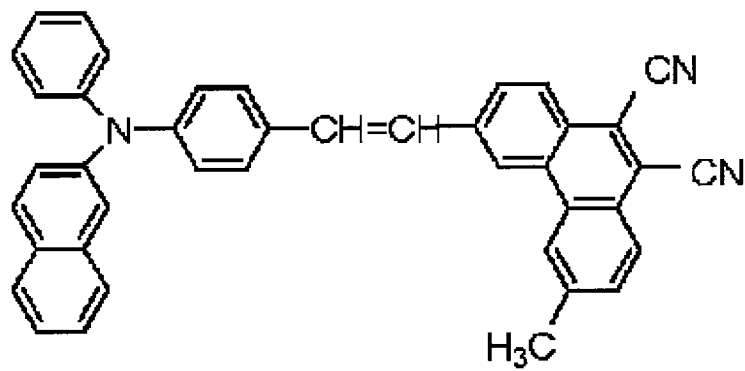
Structure expression (24) -8 :



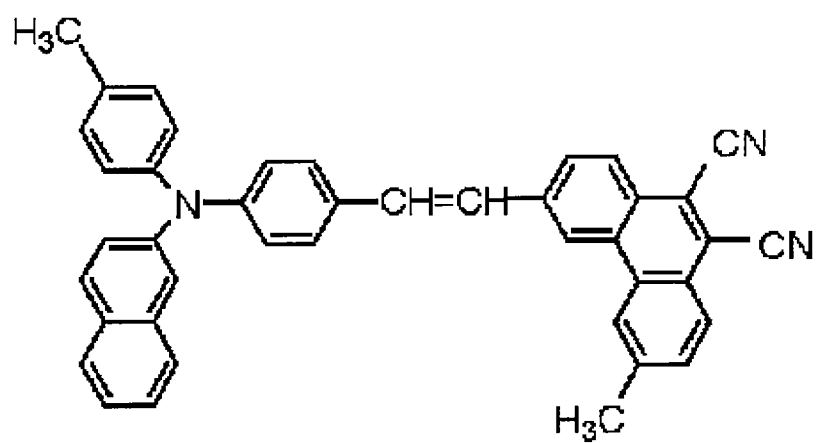
Structure expression (24) -9 :



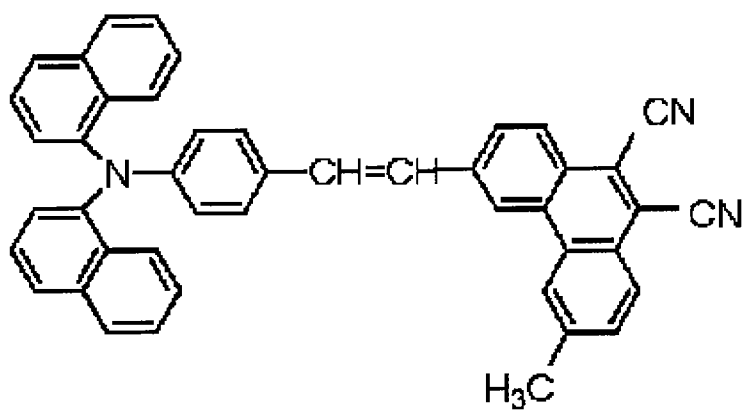
Structure expression (24) -10 :



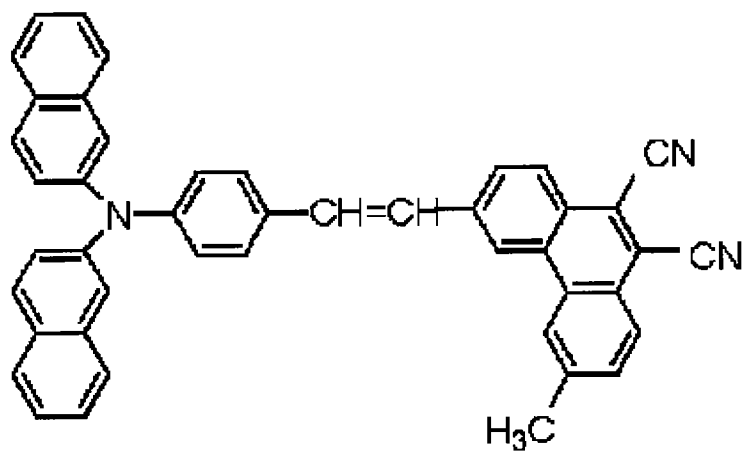
Structure expression (24) -11 :



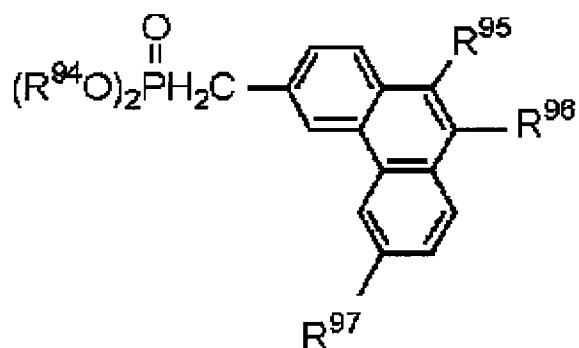
Structure expression (24) -12 :



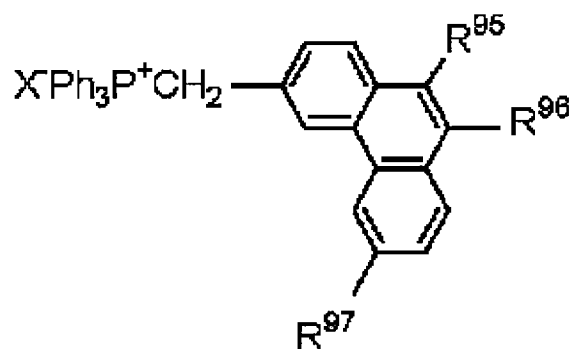
Structure expression (24) -13 :



[Claim 13] Phosphonate or phosphonium expressed with the following general formula [VII] or [VIII].



[Formula 46] General formula [VII] :



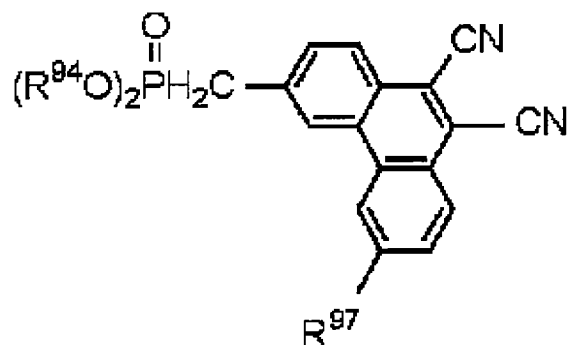
General formula [VIII] :

(However, in said general formula [VII] and [VIII],  $R^{94}$  is a hydrocarbon group,  $R^{95}$  and  $R^{96}$  are the radicals equivalent to said  $R_3$ ,  $R_4$ ,  $R_{13}$ ,  $R_{14}$ ,  $R_{23}$ ,  $R_{24}$ ,  $R_{40}$ ,  $R_{41}$ ,  $R_{57}$ , or  $R_{58}$ , respectively,  $R^{97}$  is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and X is a halogen atom.)

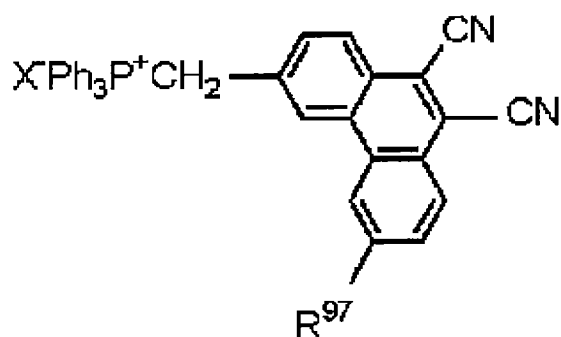
[Claim 14] Phosphonate or phosphonium said  $R^{94}$  [ whose ] is the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 13.

[Claim 15] Phosphonate or phosphonium which is expressed with the following

general formula (26) and (27) and which was indicated to claim 13.



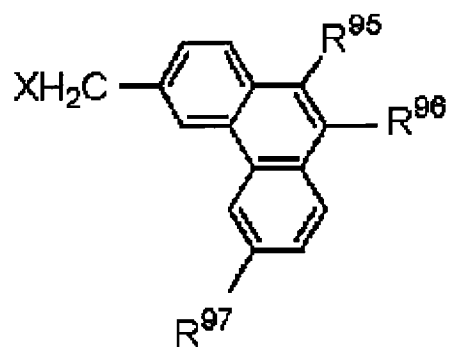
[Formula 47] General formula (26) :



General formula (27) :

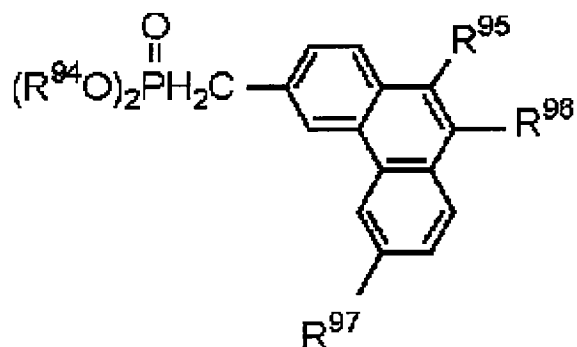
(However, in said general formula (26) and (27), R<sup>94</sup>, R<sup>97</sup>, and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 16] The manufacture approach of of the phosphonate or phosphonium which obtains the phosphonate or phosphonium expressed with the following general formula [VII] or [VIII] by making the aryl halide compound expressed with the following general formula [IX], and the phosphorous acid trialkyl or triphenyl phosphine (PPh<sub>3</sub>) expressed with the following general formula [X] react.

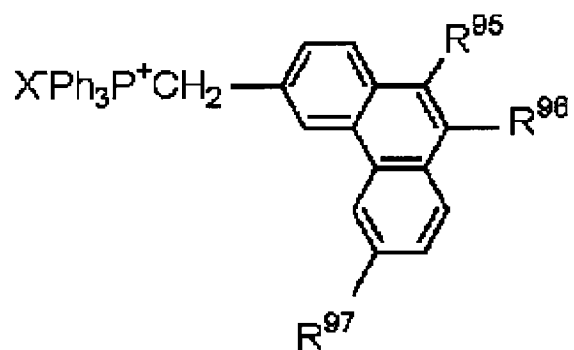


[Formula 48] General formula [IX] :

General formula [X] :P (OR<sup>94</sup>)<sub>3</sub> (however, in said general formula [X], R<sup>94</sup> is a hydrocarbon group.)



[Formula 49] General formula [VII] :



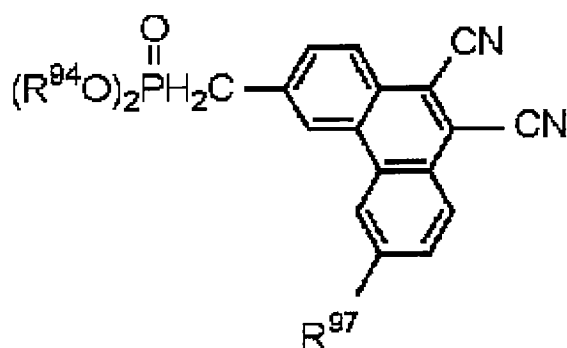
General formula [VIII] :

(However, in said general formula [VII] and [VIII], R<sup>94</sup>, R<sup>95</sup>, R<sup>96</sup>, R<sup>97</sup>, and X are the same as the above mentioned thing.)

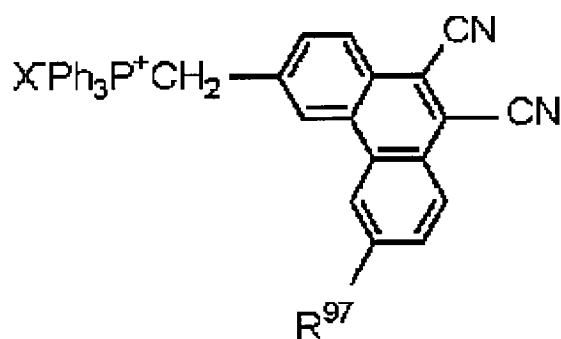
[Claim 17] The manufacture approach of of the phosphonate or phosphonium

which makes said R<sup>94</sup> the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4  
and which was indicated to claim 16.

[Claim 18] The manufacture approach of of the phosphonate or phosphonium  
which obtains the phosphonate or phosphonium expressed with the following  
general formula (26) or (27) and which was indicated to claim 16.



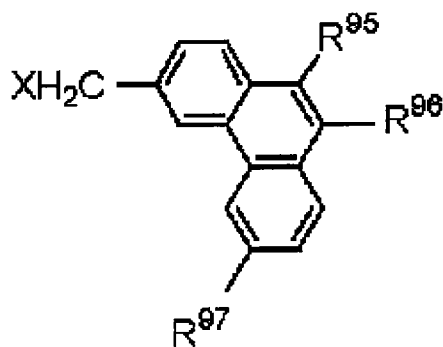
[Formula 50] General formula (26) :



General formula (27) :

(However, in said general formula (26) and (27), R<sup>94</sup>, R<sup>97</sup>, and X are the same  
as the above mentioned thing.)

[Claim 19] The aryl halide compound expressed with the following general  
formula [IX].

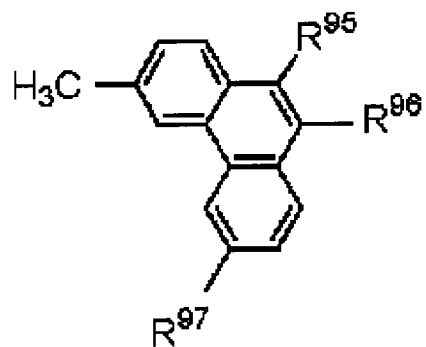


[Formula 51] General formula [IX] :

(However, in a general formula [IX],  $R^{95}$  and  $R^{96}$  are radicals which are identical or are different, respectively, those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom,  $R^{97}$  is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and X is a halogen atom.)

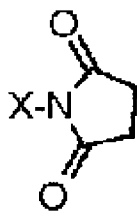
[Claim 20] The manufacture approach of an aryl halide compound of obtaining the aryl halide compound expressed with the following general formula [IX] by making the phenanthrene compound expressed with the following general formula [XI], and N-halogenation succinimide expressed with a general formula [XII] reacting.





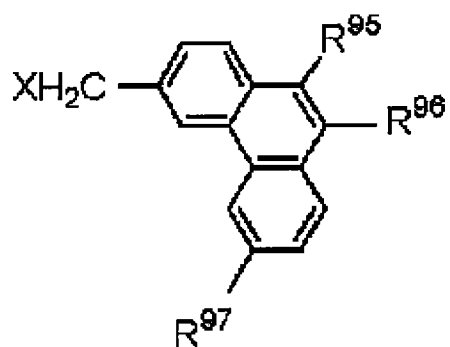
[Formula 52] General formula [XI] :

(However, in a general formula [XI], R95 and R96 are radicals which are identical or are different, respectively, those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R97 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)



[Formula 53] General formula [XII] :

(However, in said general formula [XII], X is a halogen atom.)



[Formula 54] General formula [IX] :

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to these manufacture approaches at an amino styryl phenanthrene compound suitable as an organic luminescent material which presents red luminescence and its synthetic intermediate field, and a list.

[0002]

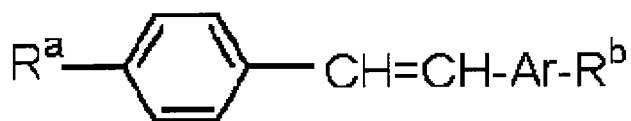
[Description of the Prior Art] It is spontaneous light, and a speed of response is high-speed, as one candidate of a flat-panel display without an angle-of-visibility dependency, organic electroluminescence devices (EL element) etc. attract attention one of these days, and the interest about an organic luminescent material is increasing as the component. Implementation of the full color organic

light emitting device which is in the place which can control the optical property of an ingredient to some extent by the molecular design, and created all of red, blue, and green three-primary-colors luminescence by each luminescent material by this is possible for the first advantage of an organic luminescent material.

[0003] Since the styryl compound shown by the following general formula [A] presents strong luminescence of blue - red to a visible-region field depending on the substituent introduced, it is available not only for an organic electroluminescence-devices ingredient but various applications. Furthermore, these ingredients are sublimability and have the advantage which can form the uniform amorphous film according to the process of vacuum deposition. Although the optical property of an ingredient can expect until to some extent by molecular orbital count etc. by the end of today, it cannot be overemphasized that the technique of manufacturing the ingredient demanded efficient in fact is the most important on industry.

[0004]

[Formula 55] General formula [A] :



(However, in said general formula [A], Ar is the aryl group which may have a substituent, and Ra and Rb show the aryl group which may have the alkyl group of a hydrogen atom, saturation, or partial saturation, and a substituent, a cyano group, a halogen atom, a nitro group, a hydrocarbon oxy-radical, the hydrocarbon amino group, or a trifluoromethyl radical, respectively, and these may be the same or may differ.)

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Although many compounds which belong to said general formula [A] as an organic luminescent material have so far been manufactured, many are blue - green as luminescence of these ingredients is shown in JP,1-245087,A, JP,4-275268,A, JP,5-121168,A (above, Idemitsu Kosan, Inc.), JP,7-188649,A, JP,10-180582,A (above, Fuji Electric Co., Ltd.), etc. What presents luminescence of orange - red until now is [ only being reported slightly and ], and the efficient [manufacturing methods, such as Institute of Electronics, Information and Communication Engineers, technical research report, organic electronics, 17 and 7 (1992), Inorganic and Organic Electroluminescence 96 Berlin, and 101 (1996),] were not established, either.

[0006] The purpose of this invention is to offer a compound suitable as an organic luminescent material of the red which presents strong luminescence and its synthetic intermediate field, and the method of manufacturing these efficient

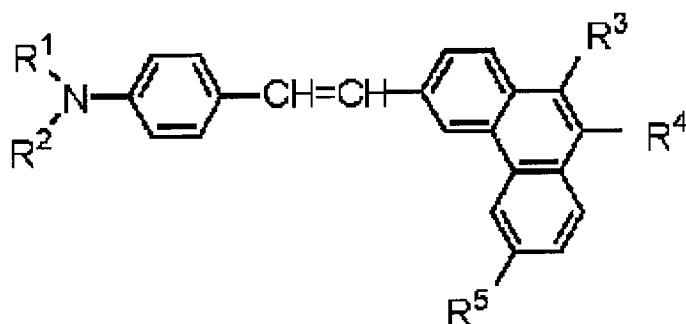
in view of the above present condition.

[0007]

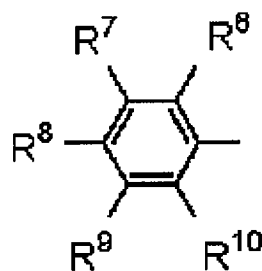
[Means for Solving the Problem] In order that this invention may solve the above-mentioned technical problem, as a result of inquiring wholeheartedly, the amino styryl phenanthrene compound expressed with a general formula [I], [II], [III], [IV], or [V] presents strong luminescence, a header and its general and efficient manufacture approach are established, and this invention is reached [ that it can become a red luminescent material and ].

[0008] That is, this invention relates to the amino styryl phenanthrene compound (the compound of this invention is called hereafter.) expressed with the following general formula [I], [II], [III], [IV], or [V] first.

[Formula 56] General formula [I] :



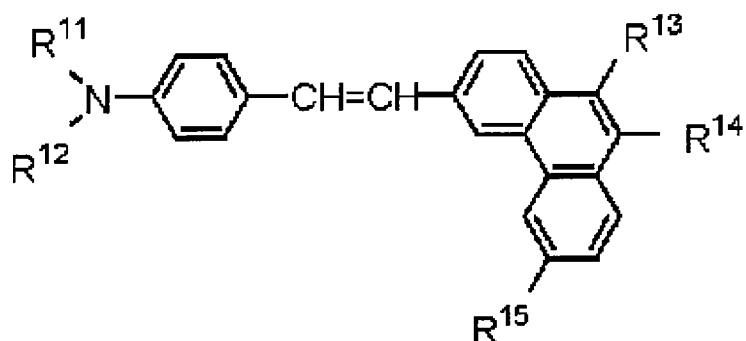
In [I], however said general formula [I], it is the aryl group as which R<sup>2</sup> is a non-permuted aryl group, and R<sup>1</sup> is expressed in the following general formula



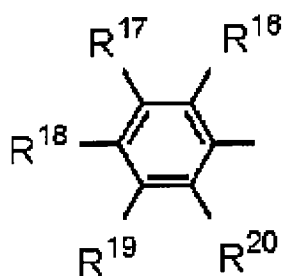
(1), and is [Formula 57]. General formula (1) :

(However, in said general formula (1), R6, R7, R8, R9, and R10 are radicals which are identical mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R3 and R4 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R5 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Formula 58] General formula [II] :



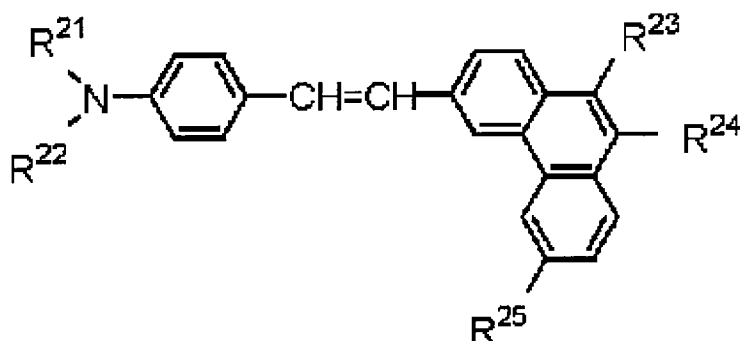
It is a radical which R11 and R12 are identities mutually in [I], however said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 59]. General formula (2) :



(However, in said general formula (2), R16, R17, R18, R19, and R20 are radicals which are identities mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R13 and R14 are radicals which are identities mutually or are different.

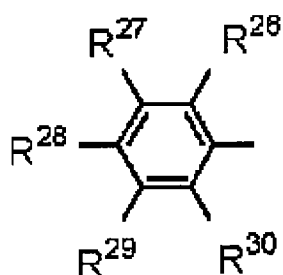
Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R15 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Formula 60] General formula [III] :



It is the aryl group as which R21 is expressed in the following general formula (3)

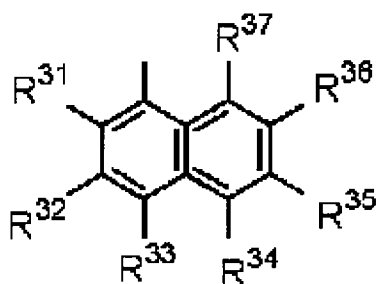
in [, however said general formula [III], and is [Formula 61]. General formula (3) :



In (said general formula (3 [ however), R26, R27, R28, R29, and R30 are radicals which are identitas mutually or are different, at least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or



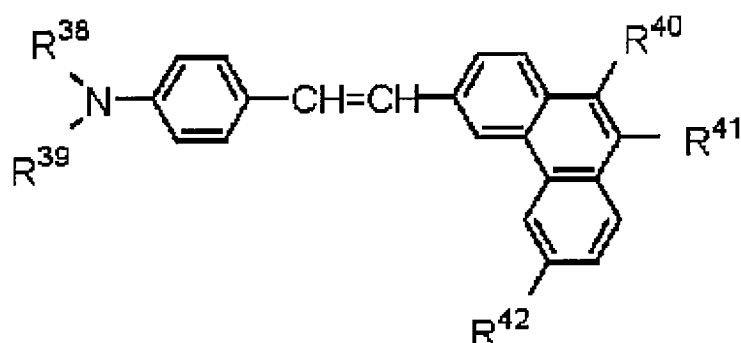
more saturation or partial saturation, a with a carbon numbers of one or more hydrocarbon oxy-radical, the with a carbon numbers of one or more hydrocarbon amino group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom.) and R22 are aryl groups expressed with the following general formula (4), and are [Formula 62] General formula (4) :



(However, in said general formula (4), R31, R32, R33, R34, R35, R36, and R37 are radicals which are identical mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R23 and R24 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a

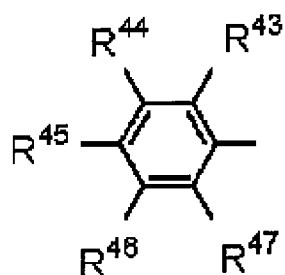
nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R25 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Formula 63] General formula [IV] :



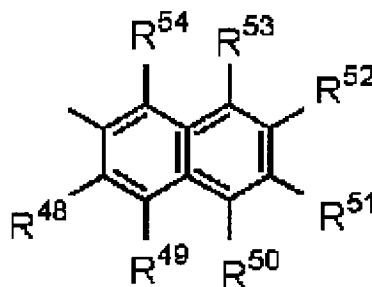
It is the aryl group as which R38 is expressed in the following general formula (5)

in [, however said general formula [IV], and is [Formula 64]. General formula (5) :



(However, in said general formula (5), R43, R44, R45, R46, and R47 are radicals which are identitas mutually or are different.) At least one The hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, it is the hydrocarbon amino group of with the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of one or more saturation or partial

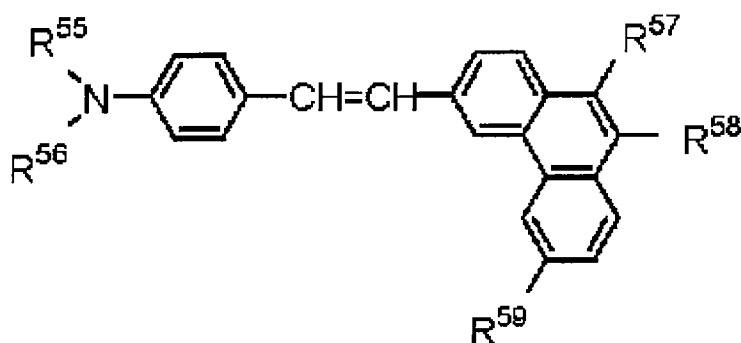
saturation, and a carbon numbers of one or more saturation, or partial saturation, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R39 is an aryl group expressed with the following general formula (6), and



is [Formula 65]. General formula (6) :

(However, in said general formula (6), R48, R49, R50, R51, R52, R53, and R54 are radicals which are identical mutually or are different.) at least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, a hydrocarbon oxy-radical, the hydrocarbon amino group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and the remainder is a hydrogen atom. R40 and R41 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R42 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ]

[Formula 66] General formula [V] :



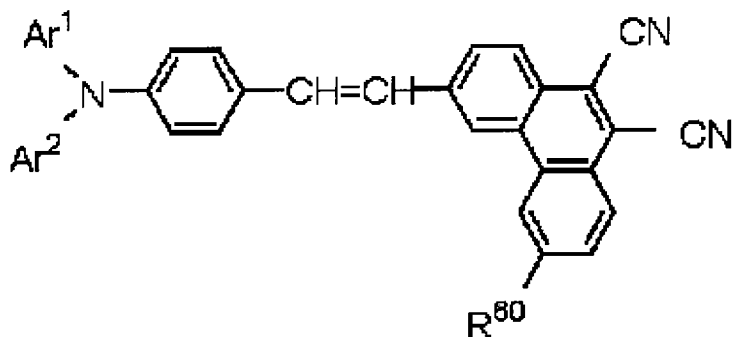
It is a radical which R55 and R56 are identical mutually, or is different in [, however said general formula [V]. At least one is the hydrocarbon group of with a hydrogen atom or a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R57 and R58 are radicals which are identical mutually or are different. Those at least one A hydrogen atom, it is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R59 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent. ] [0009]

It is the compound which can use the compound of this invention effectively as an organic luminescent material which shows red luminescence, and has the high melting point, and when excelled in electric, thermal, or chemical stability, it is amorphous, and since a vitreous state can be formed in preparation, vacuum evaporation etc. can be performed.

[0010] As for the compound of this invention, what is expressed with the

following general formula is desirable.

[Formula 67] General formula (7) :

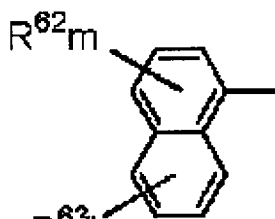


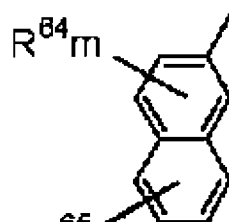
It is an aryl group in which Ar1 and Ar2 may have a substituent in [, however said general formula (7), respectively and which is identical mutually or is different, is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (8), (9), (10), (11), (12), (13), (14), (15), and (16) when it has a

substituent, and is [Formula 68]. General formula (8) :

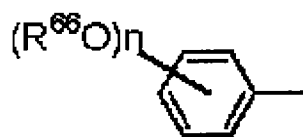


General formula (9) :

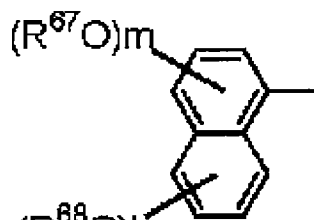




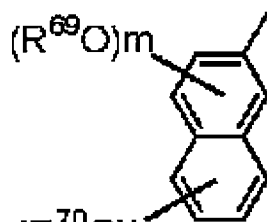
General formula (10) :  $R^{65}I$



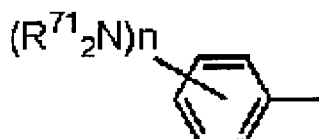
General formula (11) :



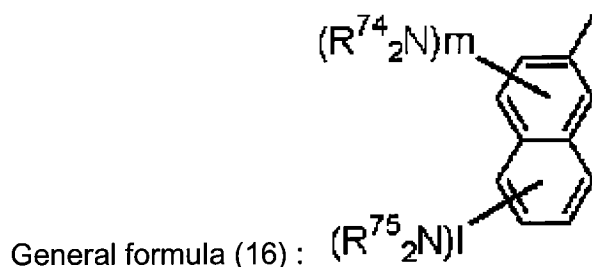
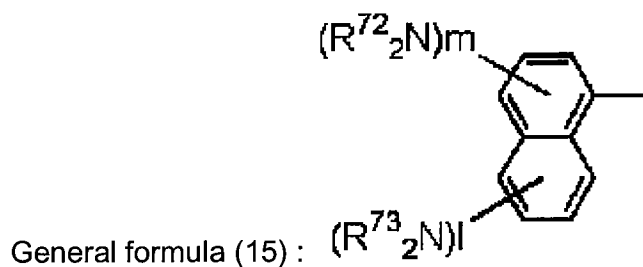
General formula (12) :  $(R^{68}O)I$



General formula (13) :  $(R^{70}O)I$



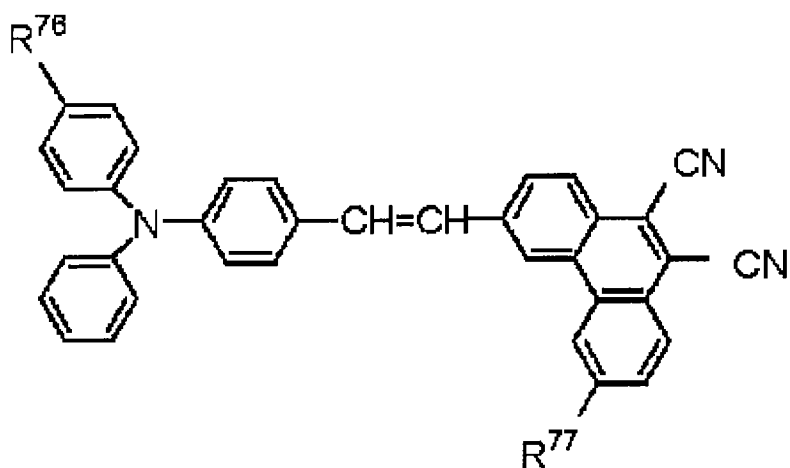
General formula (14) :



(However, it sets to said general formula (8), (9), (10), (11), (12), (13), (14), (15), and (16).) R61, R62, R63, R64, R65, R66, R67, R68, R69, R70, R71, R72, R73, R74, and R75 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more (preferably 1-6) which are identitas mutually or are different saturation, or partial saturation. n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-3. R60 is the aryl group which may have the alkyl group of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a substituent.]

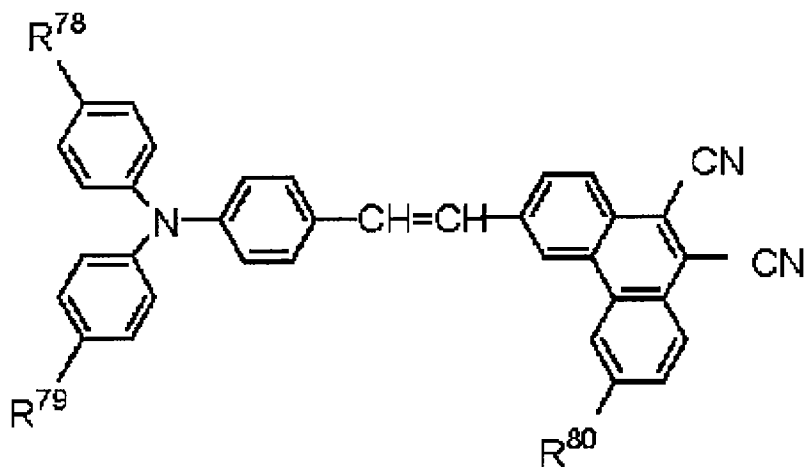
[0011] As for the compound of this invention, more specifically, what is expressed with the following general formula (17), (18), (19), (20), (21), (22), or (23) is good.

[Formula 69] General formula (17) :



(However, in said general formula (17), R76 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R77 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 70] General formula (18) :

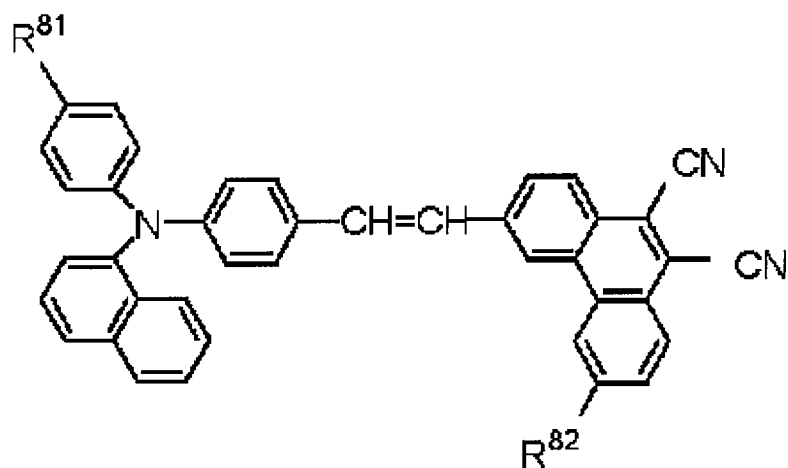


(However, in said general formula (18), R78 and R79 are the aryl groups which



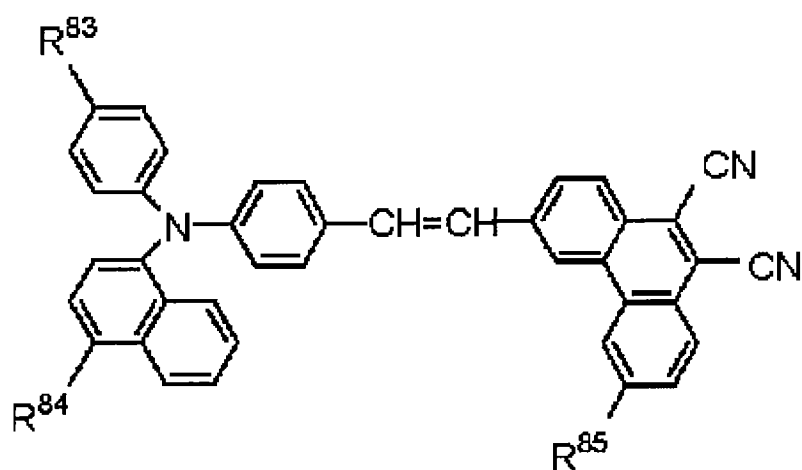
may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R80 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 71] General formula (19) :



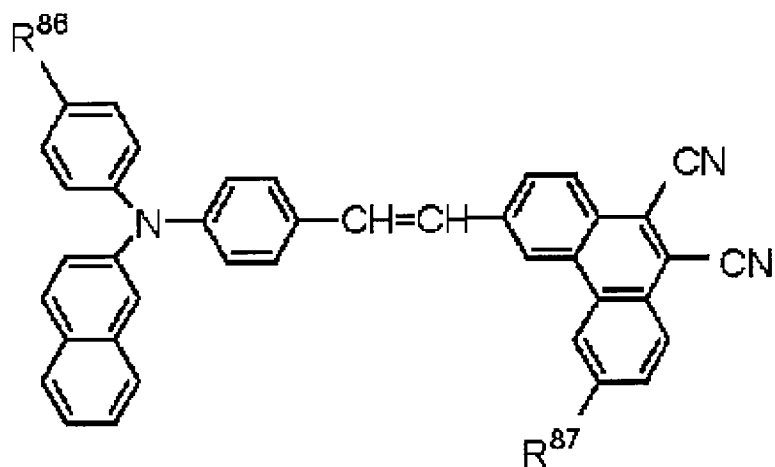
(However, in said general formula (19), R81 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R82 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 72] General formula (20) :



(However, in said general formula (20), R83 and R84 are the aryl groups which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R85 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

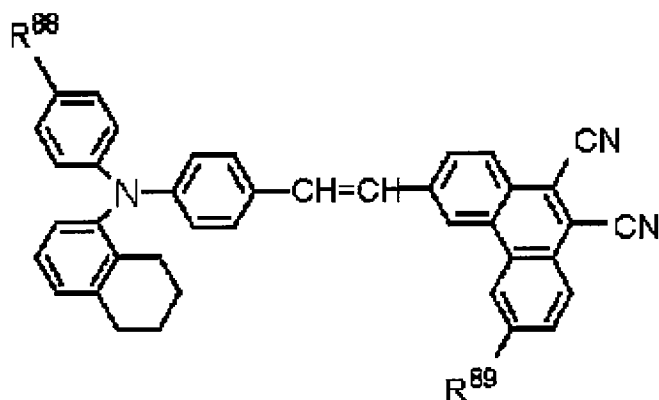
[Formula 73] General formula (21) :



(However, in said general formula (21), R86 is the aryl group which may have

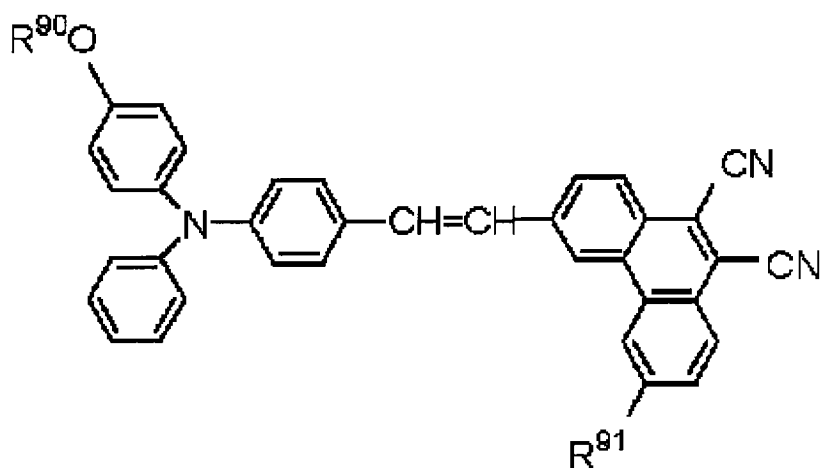
the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R87 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[Formula 74] General formula (22) :



(However, in said general formula (22), R88 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R89 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

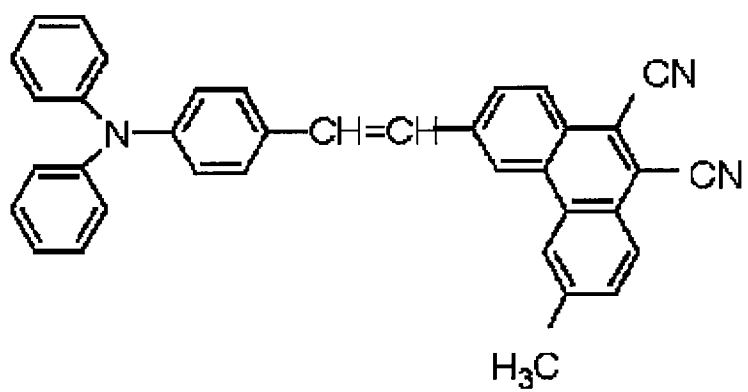
[Formula 75] General formula (23) :



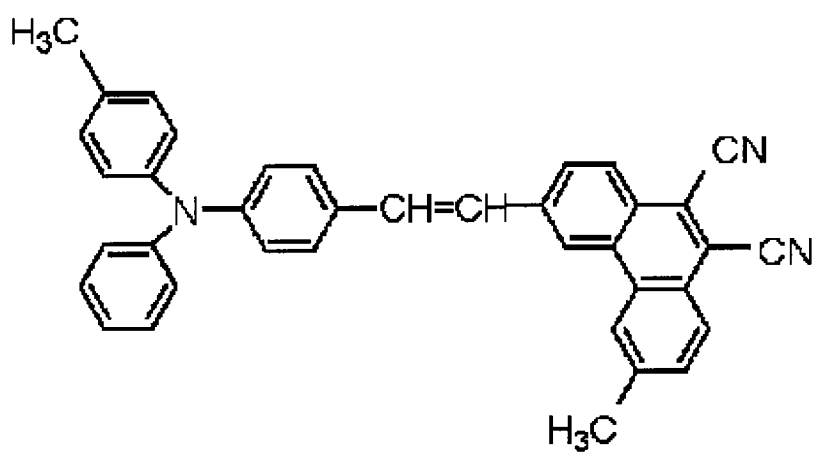
(However, in said general formula (23), R<sub>90</sub> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and R<sub>91</sub> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[0012] the compound of this invention -- following structure-expression (24)-1 and (24) -2, (24)-3, (24)-4, and (24) -5, (24)-6, (24)-7, and (24) -8, (24)-9, (24)-10, and (24) -- what is expressed with -11, (24)-12, and (24)-13 is illustrated concretely.

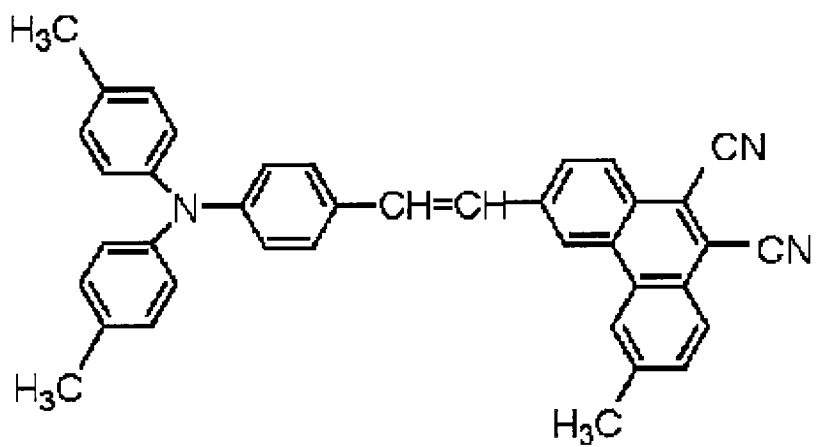
[Formula 76] Structure expression (24) -1 :



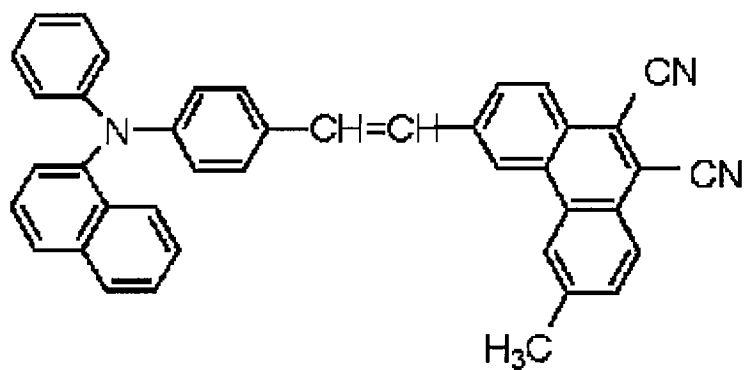
Structure expression (24) -2 :



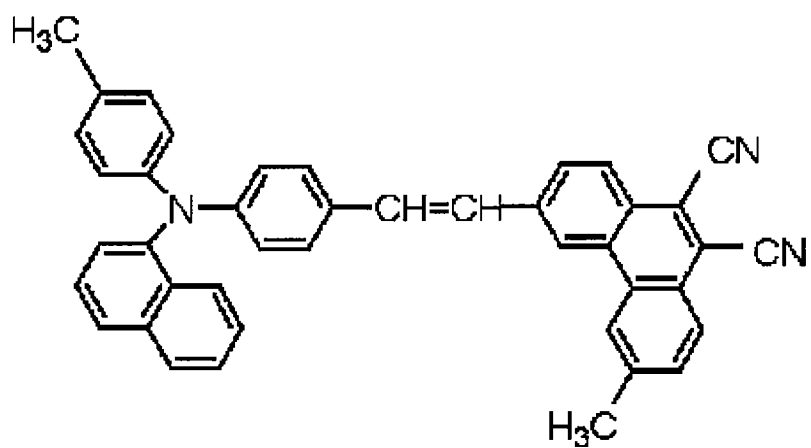
Structure expression (24) -3 :



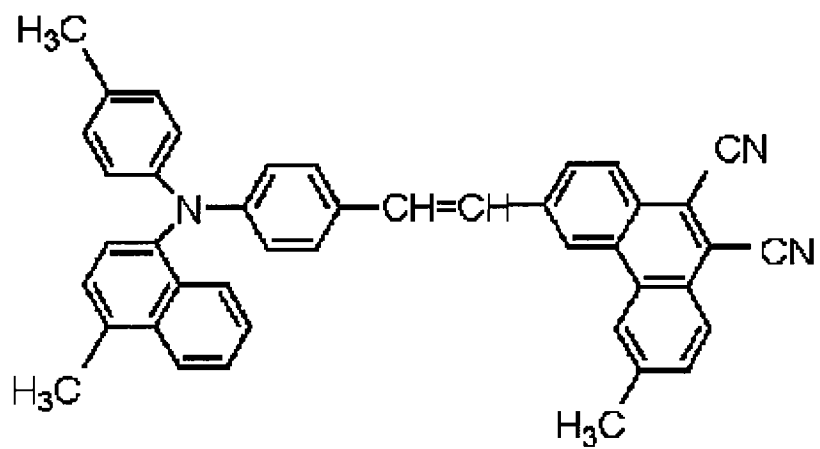
Structure                      expression                      (24)                      -4                      :



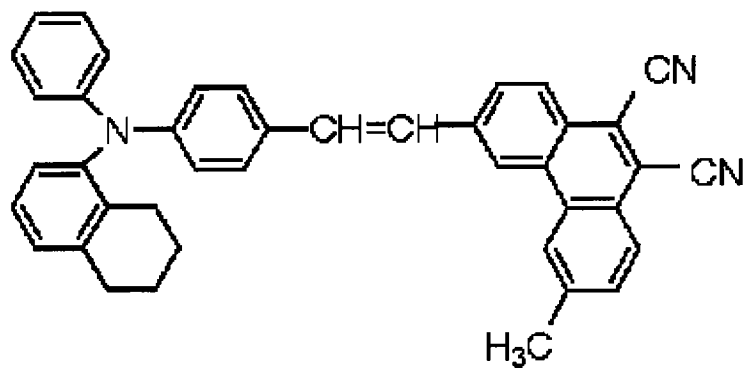
Structure                      expression                      (24)                      -5                      :



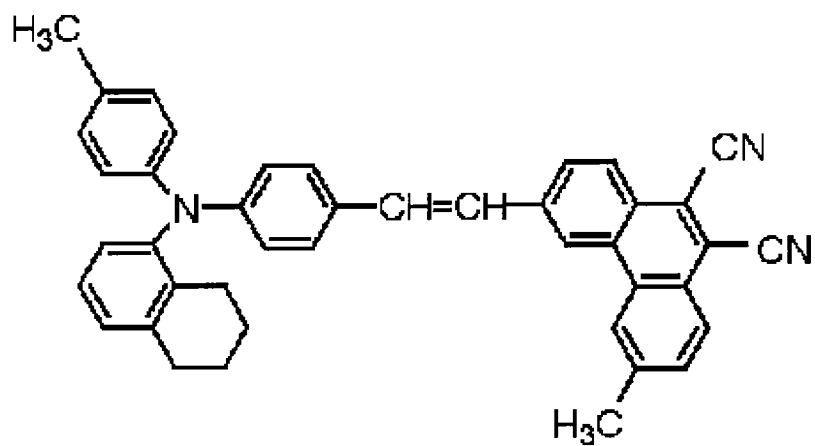
Structure                      expression                      (24)                      -6                      :



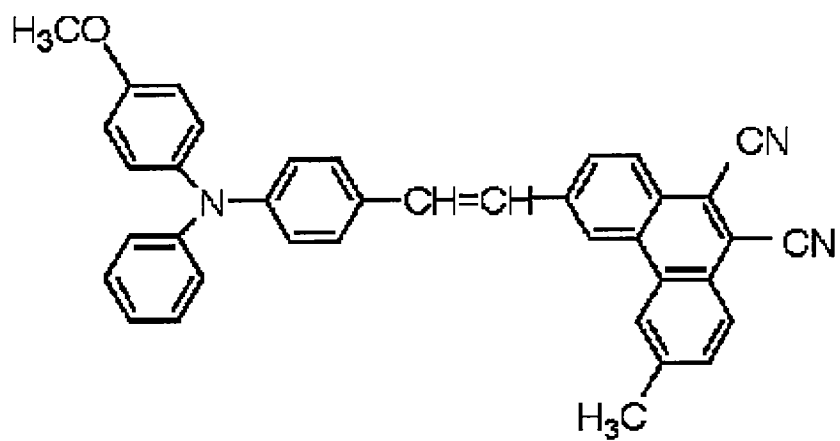
Structure                      expression                      (24)                      -7                      :



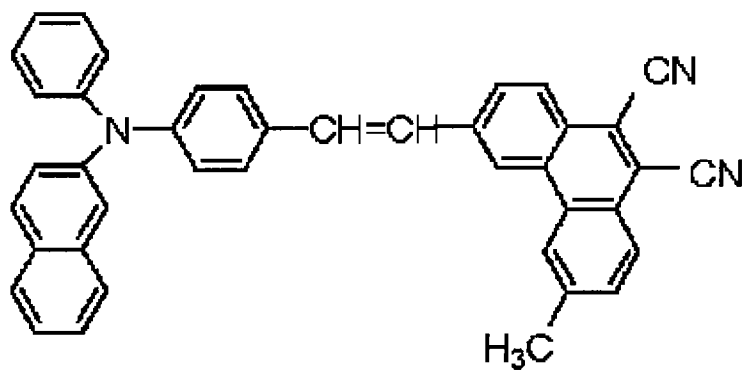
Structure                      expression                      (24)                      -8                      :



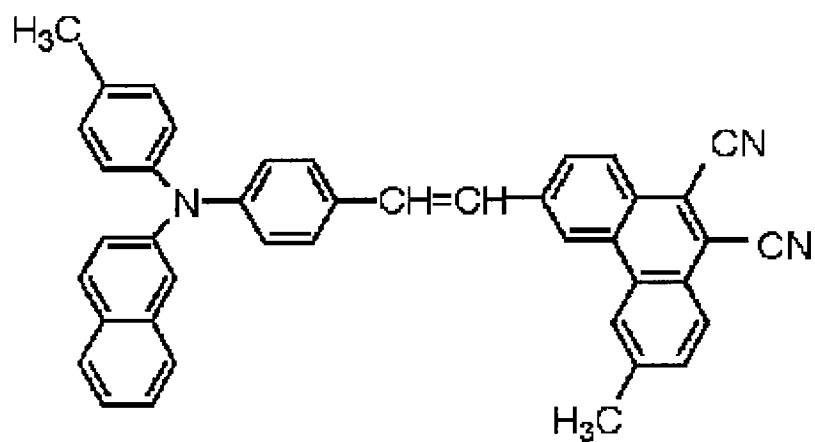
Structure                      expression                      (24)                      -9                      :



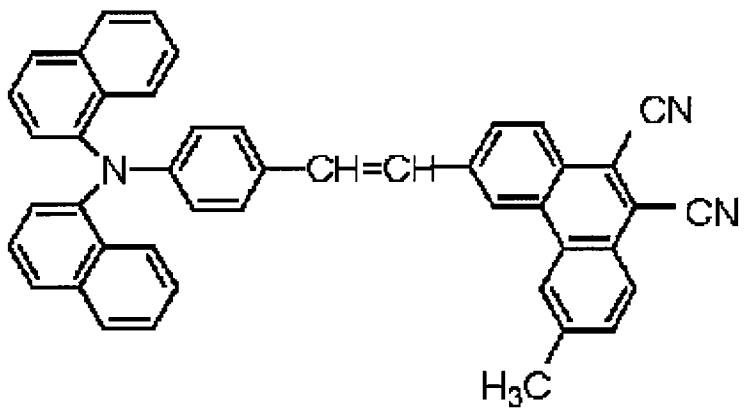
Structure                      expression                      (24)                      -10                      :



Structure                      expression                      (24)                      -11                      :



Structure                      expression                      (24)                      -12                      :





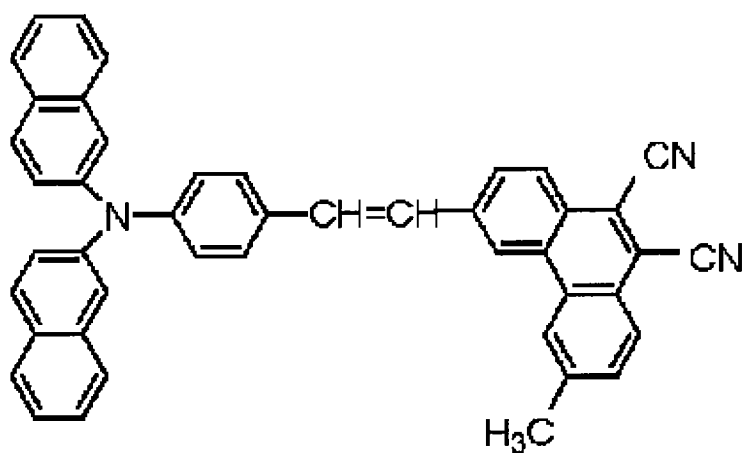
Structure

expression

(24)

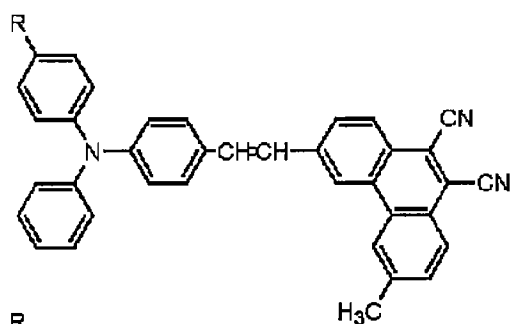
-13

:

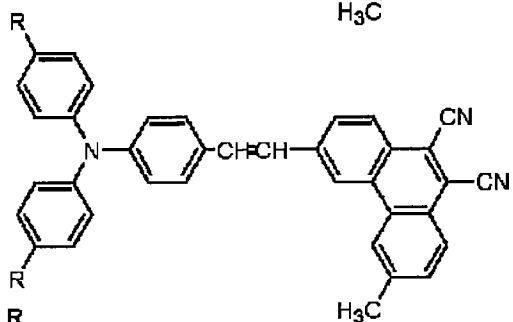


[0013] The following compound can also be illustrated besides these.

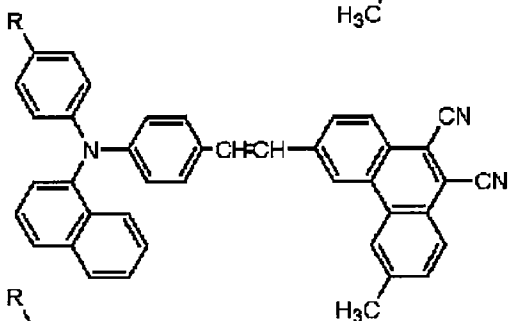
[Formula 77]



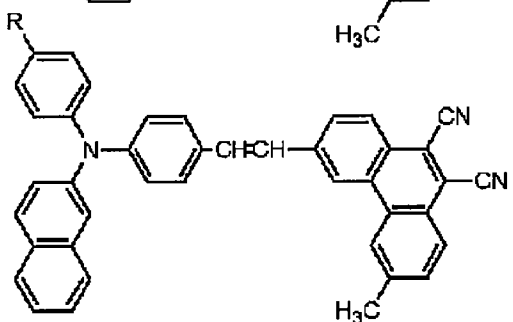
$R = \text{C}_2\text{H}_5, i\text{-C}_3\text{H}_7, i\text{-C}_4\text{H}_9, t\text{-C}_4\text{H}_9, \text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}, \text{C}_6\text{H}_5$



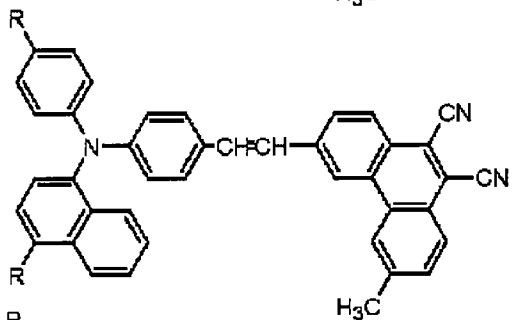
$R = \text{C}_2\text{H}_5, i\text{-C}_3\text{H}_7, i\text{-C}_4\text{H}_9, t\text{-C}_4\text{H}_9, \text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}, \text{C}_6\text{H}_5$



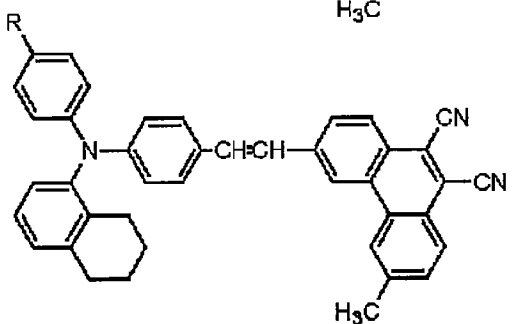
$R = \text{C}_2\text{H}_5, i\text{-C}_3\text{H}_7, i\text{-C}_4\text{H}_9, t\text{-C}_4\text{H}_9, \text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}, \text{C}_6\text{H}_5$



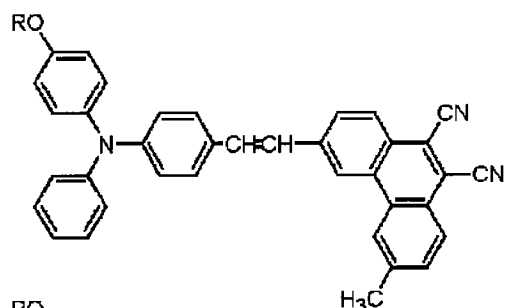
$R = \text{C}_2\text{H}_5, i\text{-C}_3\text{H}_7, i\text{-C}_4\text{H}_9, t\text{-C}_4\text{H}_9, \text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}, \text{C}_6\text{H}_5$



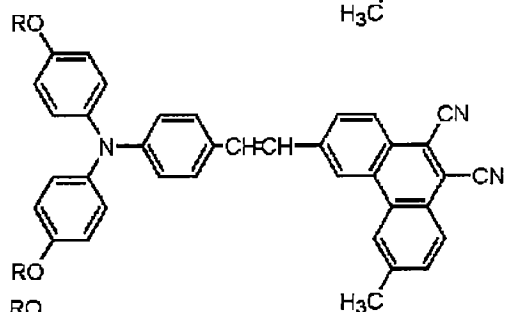
$R = \text{C}_2\text{H}_5, i\text{-C}_3\text{H}_7, i\text{-C}_4\text{H}_9, t\text{-C}_4\text{H}_9, \text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}, \text{C}_6\text{H}_5$



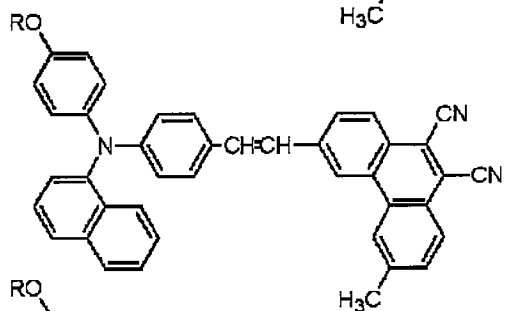
$R = \text{C}_2\text{H}_5, i\text{-C}_3\text{H}_7, i\text{-C}_4\text{H}_9, t\text{-C}_4\text{H}_9, \text{cyclo-C}_6\text{H}_{10}, \text{C}_6\text{H}_5$



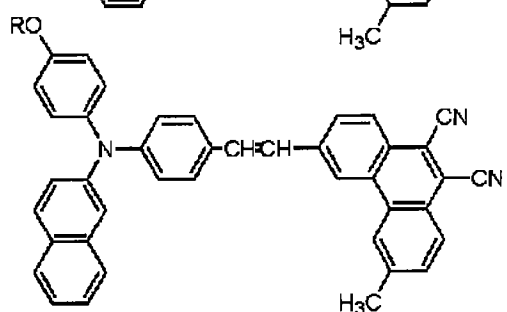
R=C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



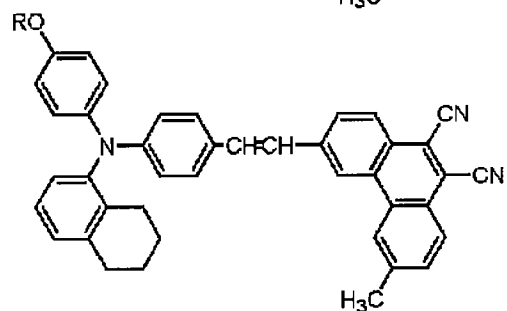
R=CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



R=CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



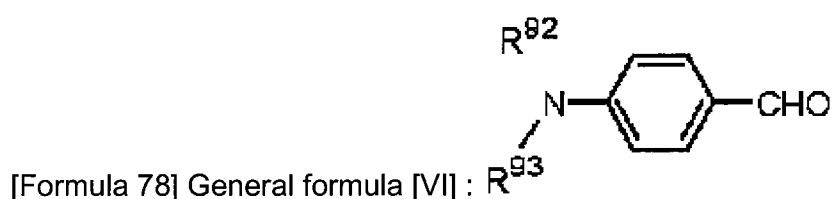
R=CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>



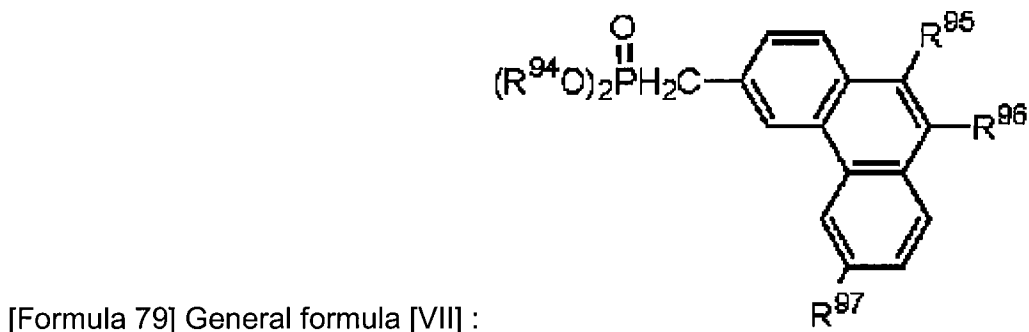
R=CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, *i*-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, *i*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>, *t*-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,  
*cyclo*-C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>

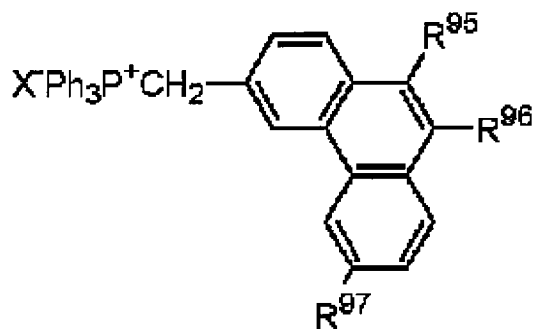
[0014] This invention as an approach of manufacturing the compound of this invention efficient again By carrying out condensation of the phosphonium and;

which are expressed with the phosphonate and/or the following general formula [VIII] which are expressed with the amino benzaldehyde expressed with the following general formula [VI], and the; following general formula [VII] The manufacture approach of this invention of obtaining the amino styryl phenanthrene compound shown by said general formula [I], [II], [III], [IV], or [V] is also offered.



(However, in said general formula [VI], R<sup>92</sup> and R<sup>93</sup> are the aryl groups equivalent to said R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>11</sup>, R<sup>12</sup>, R<sup>21</sup>, R<sup>22</sup>, R<sup>38</sup>, R<sup>39</sup>, R<sup>55</sup>, or R<sup>56</sup>, respectively.)



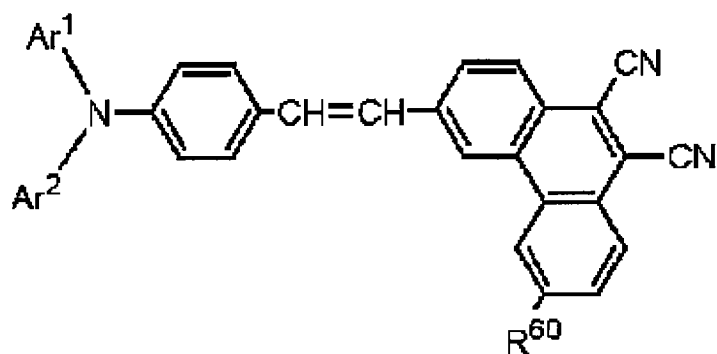


General formula [VIII] :

(However, in said general formula [VII] and [VIII], R94 is a hydrocarbon group (preferably saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4).) R95 and R96 are the radicals equivalent to said R3, R4, R13, R14, R23, R24, R40, R41, R57, or R58, respectively. R97 is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and X is a halogen atom.

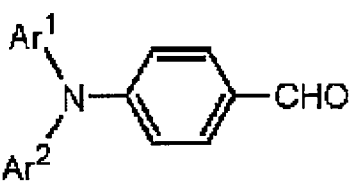
[0015] The manufacture approach of the compound of this invention performs said condensation by the Wittig HONA (Wittig-Horner) reaction or the Wittig (Wittig) reaction, by processing said phosphonate and/or said phosphonium by the base in a solvent, makes a carbanion generate and, specifically, carries out condensation to this carbanion and said 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde.

[0016] For example, it faces obtaining the amino styryl phenanthrene compound expressed with the following general formula (7), and is [Formula 80]. General

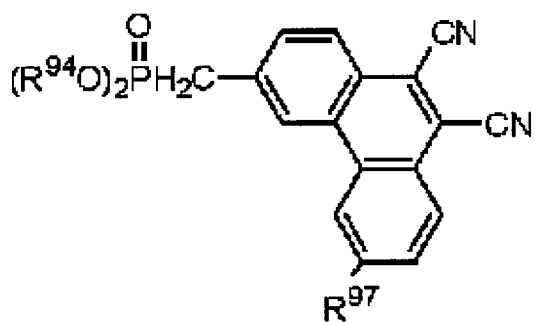


formula (7) :

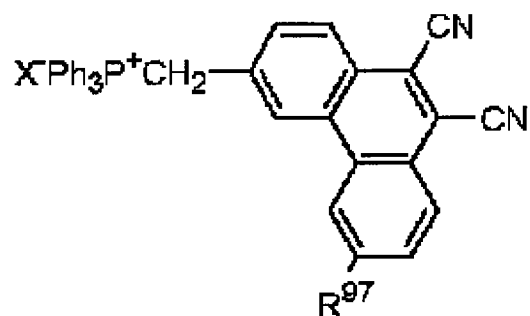
In (said general formula (7) [ however, ]),  $\text{Ar}^1$ ,  $\text{Ar}^2$ , and  $\text{R}^{60}$  are the same as the above mentioned thing respectively. Condensation of the phosphonium and; which are expressed with 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde, the phosphonate of the; following general formula (23), and/or the following general formula (24) which are expressed with) and the following general formula (25) is carried out.



[Formula 81] General formula (25) :



General formula (26) :

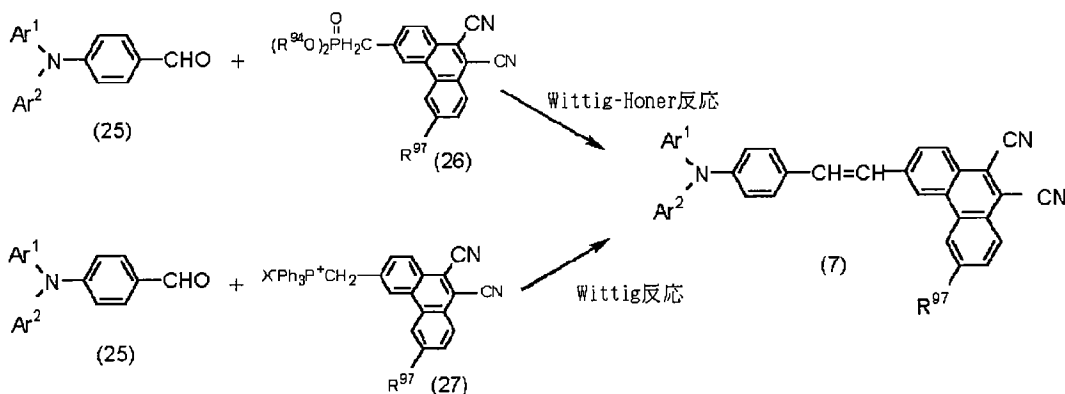


General formula (27) :

(However, in said general formula (26) and (27), R94, R97, and X are the same as the above mentioned thing.)

[0017] If this reaction is expressed with a scheme, it will become, for example like the reaction scheme 1.

[Formula 82] Reaction scheme 1 :



[0018] First, by processing the compound of said general formula (26) or said general formula (27) with a base in a suitable solvent, this reaction begins from generating a carbanion and is completed by next condensing this carbanion with the aldehyde of said general formula (25). The following can be considered as a

combination of a base and a solvent.

[0019] A sodium hydroxide/water, a sodium carbonate/water, potassium carbonate/water, a sodium ethoxide/ethanol, or dimethylformamide, Sodium methoxide / methanol-diethylether mixed solvent, or dimethylformamide, Triethylamine / ethanol, a jig lime, chloroform, or nitromethane, A pyridine / methylene chloride or nitromethane, 1, 5-JISAZA bicyclo [4.3.0] non-5-en / dimethyl sulfoxide, Potassium t-butoxide / dimethyl sulfoxide, a tetrahydrofuran, benzene, or dimethylformamide, A phenyl lithium / diethylether or a tetrahydrofuran, t-butyl lithium / diethylether, or a tetrahydrofuran, Sodium amide/ammonia, sodium hydride / dimethylformamide or a tetrahydrofuran, triethyl sodium / diethylether, or a tetrahydrofuran.

[0020] This reaction advances comparatively at low temperature (-30 degrees C - 30 degrees C), and in addition to purification of the specified substance by the chromatography being easy since it is alternative, since the compound of this invention of said general formula (7) has high crystallinity, it can raise purity with recrystallization. Although not asked especially about the approach of recrystallization, in the approach of dissolving in an acetone and adding a hexane, or toluene, the heating dissolution is carried out and the approach of condensing and cooling is simple. Ordinary pressure may perform this reaction in 3 - 24 hours.

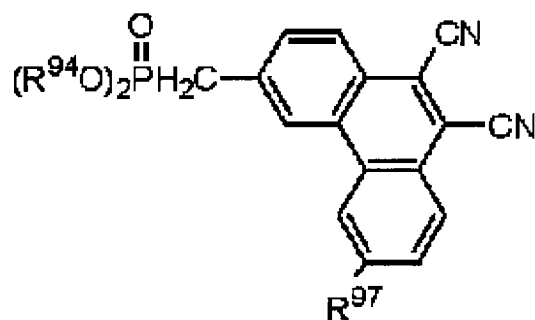


[0021] By the manufacture approach of the compound of this invention, said general formula (17), (18), The amino styryl phenanthrene compound expressed with (19), (20), (21), (22), or (23) can be obtained. Specifically Said general formula (24) -1 and (24) -2, (24)-3, (24)-4, and (24) -5, (24)-6, (24)-7, and (24) -8, (24)-9, (24)-10, and (24) -- the amino styryl phenanthrene compound expressed with -11, (24)-12, or (24)-13 It can obtain.

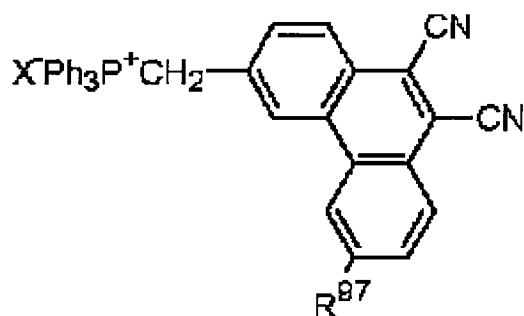
[0022] This invention also offers various compounds suitable as synthetic intermediate field of the compound of this invention again.

[0023] That is, they are the phosphonate expressed with said general formula [VII] used as synthetic intermediate field of the amino styryl phenanthrene compound expressed with said general formula [I], [II], [III], [IV], or [V], or said general formula [VIII] phosphonium.

[0024] This synthetic intermediate field (the synthetic intermediate field 1 of this invention are called hereafter.) are specifically expressed with the following general formula (26) or (27).



[Formula 83] General formula (26) :

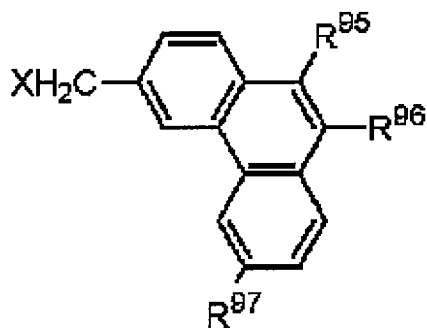


General formula (27) :

(However, in said general formula (26) and (27), R94, R97, and X are the same as the above mentioned thing.)

[0025] The synthetic intermediate field of this invention can be drawn as follows from the synthetic intermediate field as the precursor.

[0026] The phosphonium expressed with the phosphonate or the following general formula [VIII] expressed with the following general formula [VII] is obtained as synthetic intermediate field by making the aryl halide compound expressed with the following general formula [IX], and the phosphite trialkyl or triphenyl phosphine (PPh<sub>3</sub>) expressed with the following general formula [X] react. This reaction is good as 30 minutes - reaction-time 24 hours at the reaction temperature of 120 degrees C - 160 degrees C, and ordinary pressure in solvents, such as a xylene which has a non-solvent or the boiling point 120 degrees C or more, or the phosphite trialkyl of an overlarge.



[Formula 84] General formula [IX] :

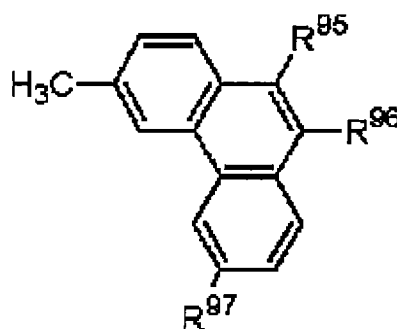
(However, in a general formula [IX], R<sup>95</sup> and R<sup>96</sup> are radicals which are identical or are different, respectively, those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, the remainder is a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, R<sup>97</sup> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent, and X is a halogen atom.)

General formula [X] :P (OR<sup>94</sup>)<sub>3</sub> (however, in said general formula [X], R<sup>94</sup> is the hydrocarbon group of the saturation of a hydrocarbon group, especially carbon numbers 1-4, or partial saturation.) [0027] This invention also offers the aryl halide compound (the synthetic intermediate field 2 of this invention are called hereafter.) expressed with said general formula [IX] as synthetic intermediate field for obtaining the synthetic intermediate field 1 again.

[0028] The synthetic intermediate product 2 of this invention can be obtained by making the dimethyl phenanthrene compound expressed with the following

general formula [XI], and N-halogenation succinimide expressed with the following general formula [XII] react to the bottom of an optical exposure. For example, it is made to react by the reaction time of 30 - 48 hours by the temperature of 20-120 degrees C, and ordinary pressure among solvents, such as a carbon tetrachloride, chloroform, benzene, and a chlorobenzene, using the light source of a high pressure mercury vapor lamp, a low pressure mercury lamp, a xenon LGT, a halogen LGT, daylight, a fluorescent lamp, etc.

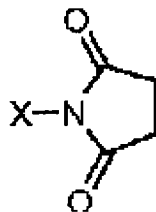
[0029]



[Formula 85] General formula [XI] :

(However, in a general formula [XI], R<sup>95</sup> and R<sup>96</sup> are radicals which are identical or are different, respectively, those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, a trifluoromethyl radical, or a halogen atom, and R<sup>97</sup> is the aryl group which may have the alkyl group of the saturation of a hydrogen atom and carbon numbers 1-6, or partial saturation, or a substituent.)

[0030]

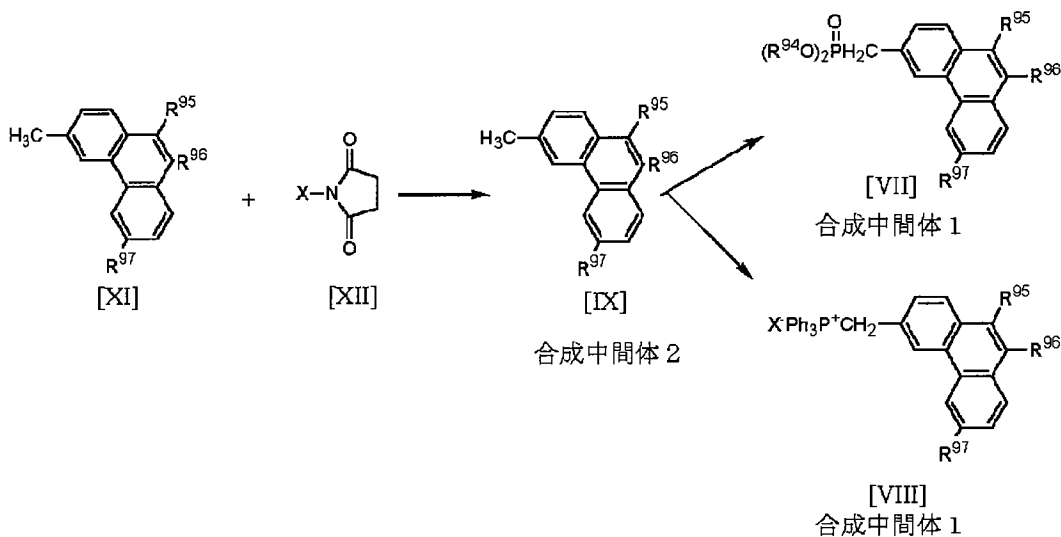


[Formula 86] General formula [XII] :

[(However, in said general formula [XII], X is a halogen atom.) 0031] The following reaction scheme 2 can show the reaction which obtains each synthetic intermediate fields 1 and 2 described above, respectively.

[0032]

[Formula 87] Reaction scheme 2 :



[0033] Drawing 10 - drawing 13 show the example of the organic electroluminescence devices (EL element) which use the compound of this invention as an organic luminescent material, respectively.

[0034] Drawing 10 is the transparency mold organic electroluminescence

devices A to which the luminescence light 20 penetrates cathode 3, and the luminescence light 20 can be observed also from a protective layer 4 side.

Drawing 11 shows the reflective mold organic electroluminescence devices B which also obtain the reflected light in cathode 3 as a luminescence light 20.

[0035] Among drawing, one is a substrate for forming organic electroluminescence devices, and can use glass, plastics, and other proper ingredients. Moreover, when a substrate can also be shared when using organic electroluminescence devices combining other display devices, for example, carrying out an active-matrix drive, it is also possible to use TFT (Thin Film Transistors: thin film transistor) as a substrate. 2 is a transparent electrode (anode plate), can use transparent electrodes ITO (Indium tin oxide) and IZO (Indium zinc oxide) and SnO<sub>2</sub> grade in the above-mentioned transparency mold organic electroluminescence devices A, and can use Cr, Fe, Co, nickel, Cu, Ta, W, Pt, Mo, Au(s), these alloys, etc. in the reflective mold organic electroluminescence devices B.

[0036] Moreover, 5 is an organic luminous layer and contains the compound of this invention as a luminescent material. About this luminous layer, well-known various configurations can be conventionally used as lamination which obtains organic electroluminescence 20. When the ingredient which constitutes an electron hole transportation layer or an electron transport layer has a

luminescence so that it may mention later for example, the structure which carried out the laminating of these thin films can be used. Furthermore, in order to raise charge transportability ability in the range which fills the purpose of this invention, both an electron hole transportation layer, and both [ either or ] bar using the structure which carried out the laminating of the thin film of two or more sorts of ingredients, or the thin film which consists of a presentation which mixed two or more sorts of ingredients. Moreover, in order to improve the luminescence engine performance, the ingredient of at least one or more sorts of fluorescence may be used, and the structure which pinched this thin film between the electron hole transportation layer and the electron transport layer, and the structure where the ingredient of at least one or more sorts of fluorescence was further included in an electron hole transportation layer, electron transport layers, or these both may be used. In order to improve luminous efficiency in these cases, it is also possible to include the thin film for controlling transportation of an electron hole or an electron in the lamination.

[0037] Since the compound of this invention has both electronic transportability ability and electron hole transportability ability, it can be used during a component configuration also as a luminous layer which served as the electron hole transportation layer also as a luminous layer which served both as the electron transport layer. Moreover, it is also possible to consider as the

configuration put in the electron transport layer and the electron hole transportation layer by making the compound of this invention into a luminous layer.

[0038] In addition, among drawing 10 and drawing 11 , three are cathode and can use the structure which carried out the laminating of the alloy of a metal [ activity / calcium / Li, Mg, ] and metals, such as Ag, aluminum, and In, LiF and LiO<sub>2</sub>, or these as an electrode material. In the organic electroluminescence devices of a transparency mold, the light transmittance suitable for an application can be obtained by adjusting the thickness of cathode. on the other hand -- the organic electroluminescence devices of a reflective mold -- setting -- the thickness of cathode -- thin -- carrying out -- high permeability -- holding -- in addition -- and organic electroluminescence can be taken out to a cathode side by constituting an anode plate from an ingredient with a high reflection factor. Moreover, four in drawing is the closure and a protective layer, and the effectiveness goes up it by making the organic whole electroluminescence devices into wrap structure. A proper ingredient can be used if airtightness is maintained. Moreover, 8 is a drive power source for current impregnation.

[0039] In the organic electroluminescence devices based on this invention, the organic layer has the organic laminated structure (it is terrorism structure to a single) to which the laminating of an electron hole transportation layer and the



electron transport layer was carried out, and the compound of this invention may be used as a formation ingredient of an electron hole transportation layer or an electron transport layer. Or the organic layer has the organic laminated structure (it is terrorism structure to double) to which the laminating of an electron hole transportation layer, a luminous layer, and the electron transport layer was carried out one by one, and the compound of this invention may be used as a formation ingredient of a luminous layer.

[0040] When the example of the organic electroluminescence devices which have such an organic laminated structure is shown, drawing 12 has the laminated structure to which the laminating of organic layer 5a which consists of an anode plate 2, and the electron hole transportation layer 6 and electron transport layer 7 of translucency on the penetrable substrate 1, and the cathode 3 was carried out one by one, and this laminated structure is the organic electroluminescence devices C of terrorism structure in the single a protective coat 4 comes for the closure to be carried out.

[0041] In the case of the lamination which omitted the luminous layer as shown in drawing 12 , the luminescence light 20 of predetermined wavelength is generated from the interface of the electron hole transportation layer 6 and an electron transport layer 7. Such luminescence light is observed from a substrate 1 side.

[0042] Moreover, drawing 13 has the laminated structure to which the laminating of organic layer 5b which consists of an anode plate 2, and the electron hole transportation layer 10, the luminous layer 11 and electron transport layer 12 of translucency on the substrate 1 of translucency, and the cathode 3 was carried out one by one, and this laminated structure is the organic electroluminescence devices D of terrorism structure in the double a protective coat 4 comes for the closure to be carried out.

[0043] In the organic electroluminescence devices shown in drawing 13 , the electron with which the electron hole poured in from the anode plate 2 was poured in from cathode 3 through the electron hole transportation layer 10 reaches a luminous layer 11 through an electron transport layer 12, respectively by impressing direct current voltage between an anode plate 2 and cathode 3. Consequently, the recombination of an electron/electron hole arises in a luminous layer 11, a singlet exciton generates, and luminescence of predetermined wavelength is generated from this singlet exciton.

[0044] In each organic electroluminescence devices C and D mentioned above, the ingredient of light transmission nature, such as glass and plastics, can be suitably used for a substrate 1. Moreover, when using combining other display devices, or when arranging the laminated structure shown in drawing 12 and drawing 13 in the shape of a matrix, it is good considering this substrate as

common use. Moreover, Components C and D can all take any structure of a transparency mold and a reflective mold.

[0045] Moreover, an anode plate 2 is a transparent electrode and ITO (indium tin oxide) and SnO<sub>2</sub> grade can be used for it. Between this anode plate 2 and the electron hole transportation layer 6 (or electron hole transportation layer 10), the thin film which consists of the organic substance or an organometallic compound may be prepared in order to improve the injection efficiency of a charge. In addition, when the protective coat 4 is formed with conductive ingredients, such as a metal, the insulator layer may be prepared in the side face of an anode plate 2.

[0046] Moreover, the electron hole transportation layer 6 and an electron transport layer 7 are organic layers by which the laminating was carried out, the compound of this invention contains organic layer 5a in the organic electroluminescence devices C to these either or both sides, and it is good as the luminescent electron hole transportation layer 6 or a luminescent electron transport layer 7. Organic layer 5b in the organic electroluminescence devices D can take various laminated structures, although the electron hole transportation layer 10, the luminous layer 11 containing the compound of this invention, and an electron transport layer 12 are organic layers by which the laminating was carried out. For example, both the electron hole transportation layer, and both

[ either or ] may have a luminescence.

[0047] Moreover, although it is desirable that it is the layer which the electron hole transportation layer 6 or an electron transport layer 7, and a luminous layer 11 turn into from the compound of this invention especially, these layers may be formed only with the compound of this invention, or you may form by the compound of this invention, other electron holes, or vapor codeposition with electronic transportation ingredients (for example, aromatic amine and pyrazolines etc.). Furthermore, in an electron hole transportation layer, in order to raise electron hole transportability ability, the electron hole transportation layer which carried out the laminating of two or more sorts of electron hole transportation ingredients may be formed.

[0048] Moreover, in the organic electroluminescence devices C, although a luminous layer may be the electronic transportability luminous layer 7, depending on the electrical potential difference impressed from a power source 8, light may be emitted by the electron hole transportation layer 6 or its interface. Similarly, in the organic electroluminescence devices D, a luminous layer may be an electron transport layer 12 in addition to layer 11, and may be the electron hole transportation layer 10. In order to raise the luminescence engine performance, it is good that it is the structure where the luminous layer 11 which used at least one sort of fluorescence ingredients was made to pinch between

an electron hole transportation layer and an electron transport layer. Or the structure where an electron hole transportation layer, an electron transport layer, or both [ these ] layers were made to contain this fluorescence ingredient may be constituted. In such a case, in order to improve luminous efficiency, it is also possible to include the thin films (a hole blocking layer, exciton generation layer, etc.) for controlling transportation of an electron hole or an electron in the lamination.

[0049] Moreover, you may be the structure in which could use the alloy of a metal [ activity / calcium / Li, Mg, ] and metals, such as Ag, aluminum, and In, as an ingredient used for cathode 3, and these metal layers carried out the laminating. In addition, the organic electroluminescence devices corresponding to an application are producible by choosing the thickness and the quality of the material of cathode suitably.

[0050] Moreover, a protective coat 4 acts as closure film, is making the organic whole electroluminescence devices into wrap structure, and can improve charge injection efficiency and luminous efficiency. In addition, if the airtightness is maintained, a single metal or alloys, such as aluminum, gold, and chromium, etc. can choose the ingredient suitably.

[0051] Although the current impressed to each above-mentioned organic electroluminescence devices is usually a direct current, pulse current and an

alternating current may be used. If a current value and an electrical-potential-difference value are within the limits which does not mind a component, there will be especially no limit, but when the power consumption and the life of organic electroluminescence devices are taken into consideration, it is desirable to make light emit efficiently with as small electrical energy as possible.

[0052] Next, drawing 14 is the example of a configuration of the flat-surface display which used the organic electroluminescence devices of this invention. In the full color display, like illustration, red (R) and the green organic layer 5 (5a, 5b) which can emit light in the three primary colors of (G) and blue (B) are allotted between cathode 3 and an anode plate 2. It can prepare in the shape of [ which crosses mutually ] a stripe, it is chosen by the luminance-signal circuit 14 and the control circuit 15 with a built-in shift register, and a signal level is impressed to each, and cathode 3 and an anode plate 2 are constituted so that the organic layer of the location (pixel) where the cathode 3 and the anode plate 2 which were chosen by this cross may emit light. As this drive approach, a simple matrix method or an active-matrix method can be used.

[0053] That is, it is a 8x3RGB simple matrix, and drawing 14 arranges the layered product 5 which consists of one side between cathode 3 and an anode plate 2, even if there are few electron hole transportation layers, and luminous

layers and electron transport layers either (refer to drawing 12 or drawing 13 ).

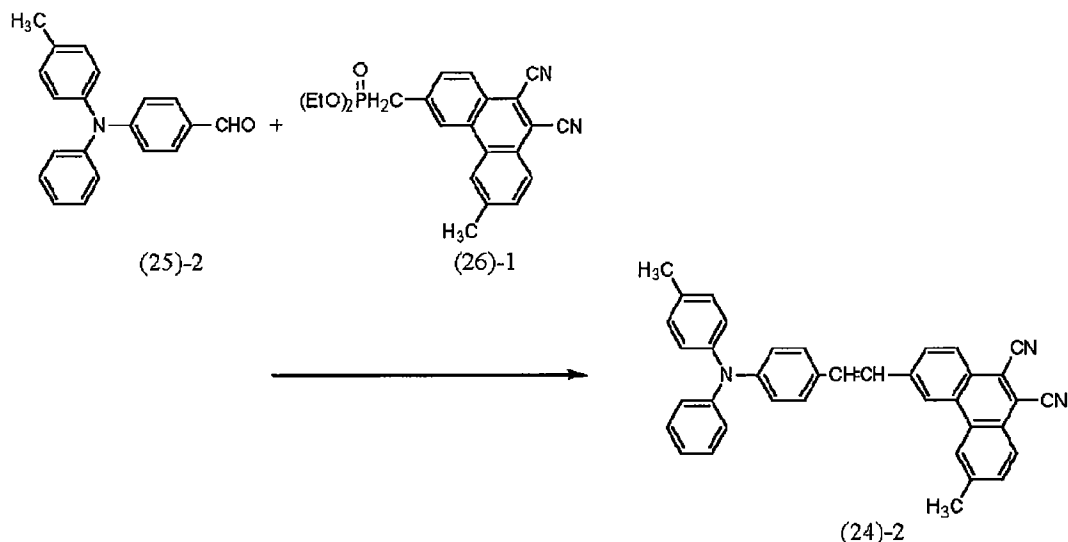
Both cathode and an anode plate are made to go direct in the shape of a matrix mutually, impress a signal level serially by the control circuits 15 and 14 with a built-in shift register, and they are constituted so that light may be emitted in the decussation location, while carrying out patterning to the shape of a stripe. Of course, the EL element of this configuration can be used also as picture reproducer as a display of an alphabetic character, a signal, etc. Moreover, the stripe-like pattern of cathode 3 and an anode plate 2 is arranged for every color of red (R), green (G), and blue (B), and it becomes possible to constitute multicolor or all full color solid-state mold flat-panel displays.

[0054]

[Example] Although this invention is concretely explained about an example below, this invention is not limited to the following examples.

[0055] Example 1 <example of composition of amino styryl phenanthrene compound (structure expression (24) -2)> [0056]

[Formula 88]



[0057] 0.194g (a mineral oil is entered) (4.86mmol) of sodium hydride is measured in a reaction container. Wash twice by the hexane and anhydrous tetrahydrofuran 10mL is made to suspend. On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind, a Wittig-Horner reagent ( ) (26) -10.583g (4.62mmol) and a 4-[N-(methylphenyl)-N-phenyl] amino benzaldehyde ((25) -2) 0.511g (1.78mmol) anhydrous tetrahydrofuran : N.N-dimethylformamide =85:15 mixed-solution 100mL is dropped over 15 minutes. It agitated at 0 degree C then for 6 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and after extracting with toluene and washing with saturation brine, it dried on anhydrous sodium sulfate.

[0058] The silica gel chromatography (Wako gel C-300, toluene:chloroform = 2:1) refined, from the toluene-hexane, it recrystallized 4 times and 0.572g of red crystals was obtained. [0059] The specified substance was identified by <sup>1</sup>H



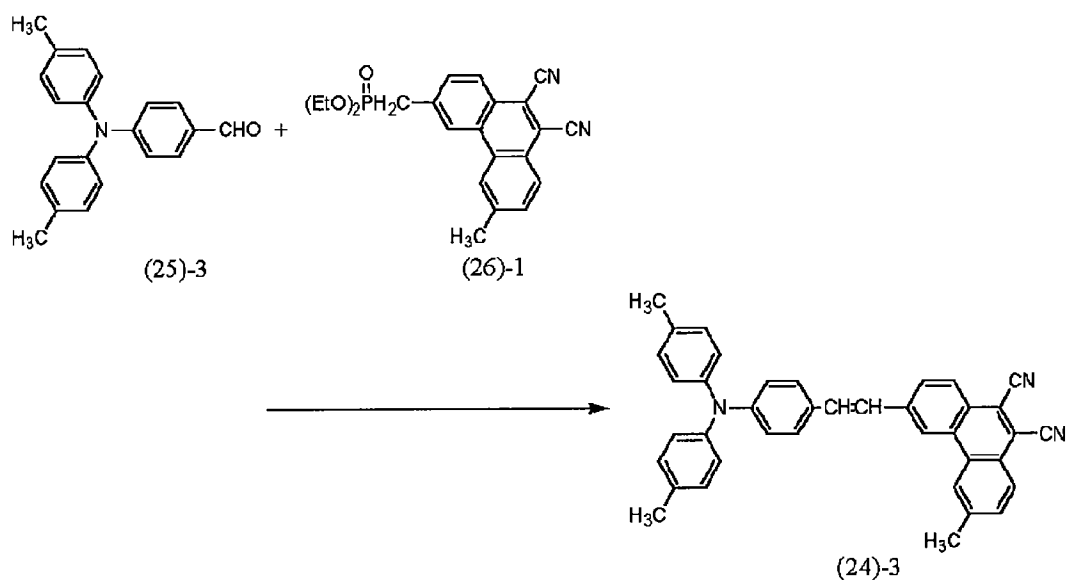
NMR and FAB-MS measurement. 67% of yield.

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm): 2.35 (s, 3H), 2.72 (s, 3H), and 7.03- 7.50 (m, 15H), 7.67 (d, 1H), 8.98 (d, 1H), 8.25 (m, 2H), 8.54 (s, 1H), and 8.63 (s, 1H) [0060]

Although the melting point was 280 degrees C as a result of the thermal analysis by DSC (differential scanning calorimetry: differential scanning calorimetry), the glass transition point was not observed. 453nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 643nm. Moreover, the  $^1\text{H}$  NMR spectrum was as being shown in drawing 1.

[0061] Example 2 <example of composition of amino styryl phenanthrene compound ((24) -3)> [0062]

[Formula 89]



[0063] 0.240g (a mineral oil is entered) (6.00mmol) of sodium hydride is measured in a reaction container. Wash twice by the hexane and anhydrous tetrahydrofuran 5mL is made to suspend. On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind, a Wittig-Horner reagent ( ) (26) anhydrous tetrahydrofuran:N.N-dimethylformamide =85:15 mixed-solution 100mL (-10.721g (2.00mmol) and 4-[N and N-Jl (methylphenyl)] amino benzaldehyde ((25) -3) 0.661g (2.20mmol)) It was dropped over 15 minutes and agitated at 0 degree C as it is for 6 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and after extracting with toluene and washing with saturation brine, it dried on anhydrous sodium sulfate.

[0064] The silica gel chromatography (Wako gel C-300, toluene:chloroform = 1:1) refined, from the toluene-hexane, it recrystallized 4 times and 0.569g of red crystals was obtained. [0065] The specified substance was identified by <sup>1</sup>H NMR and FAB-MS measurement. 53% of yield.

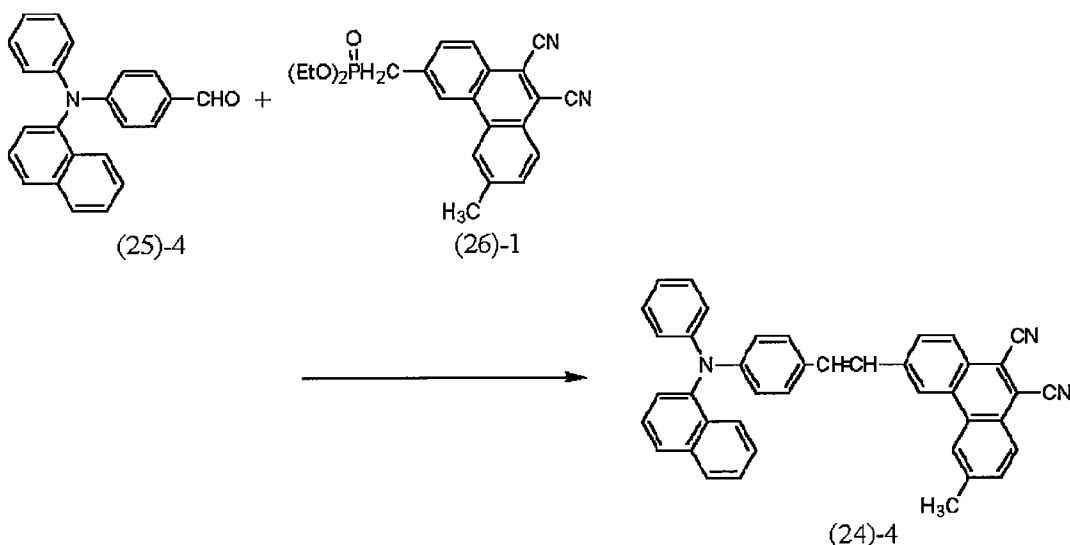
<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>) delta (ppm):2.34 (s, 6H), 2.72 (s, 3H), and 7.01- 7.39 (m, 12H), 7.44 (d, 2H), 7.67 (d, 1H), 8.01 (d, 1H), 8.28 (m, 2H), 8.55 (s, 1H), and 8.65 (s, 1H) [0066] Although the melting point was 312 degrees C as a result of the thermal analysis by DSC, the glass transition point was not observed. 460nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 667nm. Moreover, the <sup>1</sup>H NMR spectrum was

as being shown in drawing 2 .

[0067] Example 3 <example of composition of amino styryl phenanthrene

compound ((24) -4)> [0068]

[Formula 90]



[0069] 0.308g (a mineral oil is entered) (7.77mmol) of sodium hydride is measured in a reaction container. Wash twice by the hexane and anhydrous tetrahydrofuran 20mL is made to suspend. On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind Wittig-Horner ( ) (26) 0.925g of -1 reagents (2.57mmol) and a 4-[N-(1-naphthyl)-N-phenyl] amino benzaldehyde ((25) -4) 1.16g (3.59mmol) anhydrous tetrahydrofuran : N.N-dimethylformamide =9:1 mixed-solution 100mL is dropped over 15 minutes. It stirred at the room temperature further by 0 degree C then for 12 hours for 6 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and after extracting with toluene and washing

with saturation brine, it dried on anhydrous sodium sulfate.

[0070] After alumina chromatography (200 meshes and a toluene:tetrahydrofuran = 1:1) refined, flash chromatography (Merk Silica Gel HF254, toluene) refined, it recrystallized [ hexane / toluene-] 3 times, and red crystal (7)0.310g was obtained.

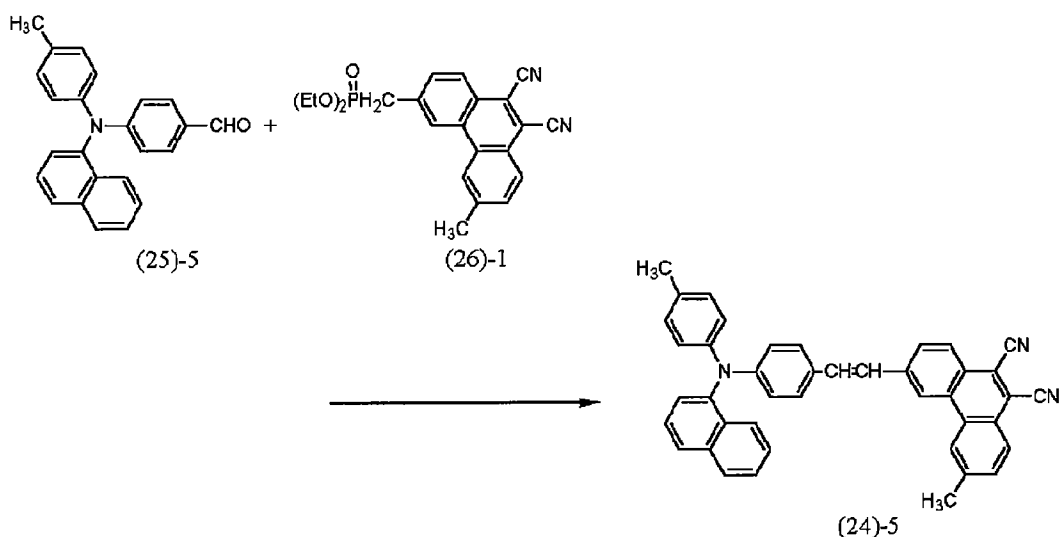
[0071] The specified substance was identified by <sup>1</sup>H NMR and FAB-MS measurement. 17% of yield.

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>) delta (ppm):2.72 (s, 3H), 6.97-7.54 (m, 15H), 7.67 (d, 1H), 7.82 (d, 1H), 7.97 (m, 3H), 8.27 (m, 2H), 8.54 (s, 1H), 8.63 (s, 1H) [0072]

Although the melting point was 315 degrees C as a result of the thermal analysis by DSC, the glass transition point was not observed. 450nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 631nm. Moreover, the <sup>1</sup>H NMR spectrum was as being shown in drawing 3 .

[0073] Example 4 <example of composition of amino styryl phenanthrene compound ((24) -5)> [0074]

[Formula 91]



[0075] 0.194g (a mineral oil is entered) (4.86mmol) of sodium hydride is measured in a reaction container. Wash twice by the hexane and anhydrous tetrahydrofuran 10mL is made to suspend. On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind Wittig-Horner ( ) (26) 0.583g of -1 reagents (1.62mmol) and a 4-[N-(methylphenyl)-N-(1-naphthyl)] amino benzaldehyde ((25) -5) 0.600g (1.78mmol) anhydrous tetrahydrofuran : N.N-dimethylformamide =85:15 mixed-solution 100mL It was dropped over 15 minutes and stirred at 0 degree C as it is for 6 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and after extracting with toluene and washing with saturation brine, it dried on anhydrous sodium sulfate.

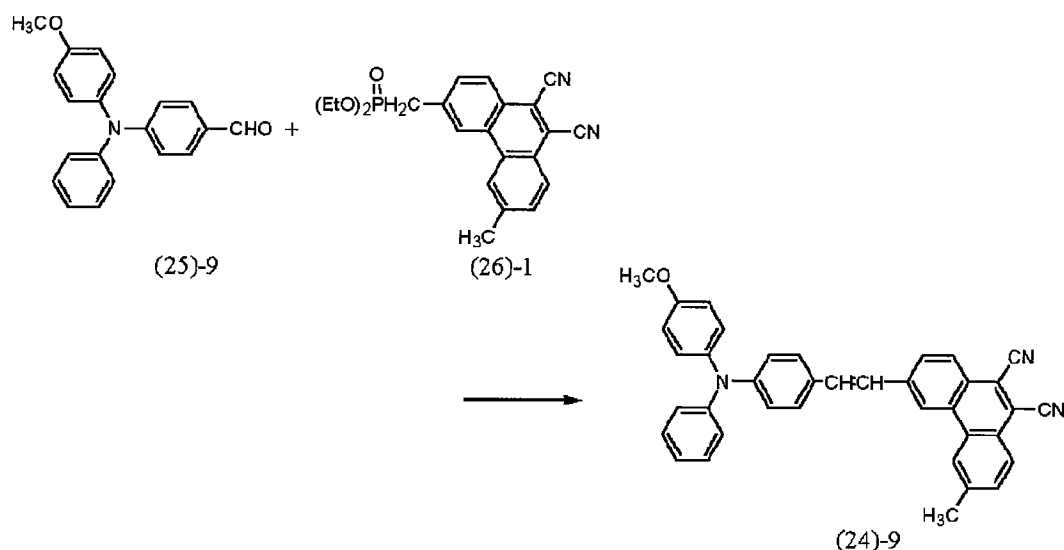
[0076] The silica gel chromatography (Wako gel C-300, toluene:chloroform = 2:1) refined, from the toluene-hexane, it recrystallized 4 times and 0.657g of red crystals was obtained. [0077] The specified substance was identified by <sup>1</sup>H

NMR and FAB-MS measurement. 70% of yield.

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm): 2.33 (s, 3H), 2.72 (s, 3H), and 6.92- 7.53 (m, 14H), 7.67 (d, 1H), 7.81 (d, 1H), and 7.90- 8.02 (m, 3H), 8.28 (m, 2H), 8.55 (s, 1H), and 8.65 (s, 1H) [0078] Although the melting point was 320 degrees C as a result of the thermal analysis by DSC, the glass transition point was not observed. 455nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 634nm. Moreover, the  $^1\text{H}$  NMR spectrum was as being shown in drawing 4 .

[0079] Example 5 <example of composition of amino styryl phenanthrene compound ((24)-9)> [0080]

[Formula 92]



[0081] 0.183g (a mineral oil is entered) (4.58mmol) of sodium hydride is measured in a reaction container. Wash twice by the hexane and anhydrous

tetrahydrofuran 20mL is made to suspend. On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind, a Wittig-Horner reagent () (26) -10.505g (2.57mmol) and a 4-[N-(methoxypheny)-N-phenyl] amino benzaldehyde ((25) -9) 0.511g (1.68mmol) anhydrous tetrahydrofuran : N.N-dimethylformamide =85:15 mixed-solution 100mL It was dropped over 15 minutes and agitated at 0 degree C as it is for 6 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and after extracting with toluene and washing with saturation brine, it dried on anhydrous sodium sulfate.

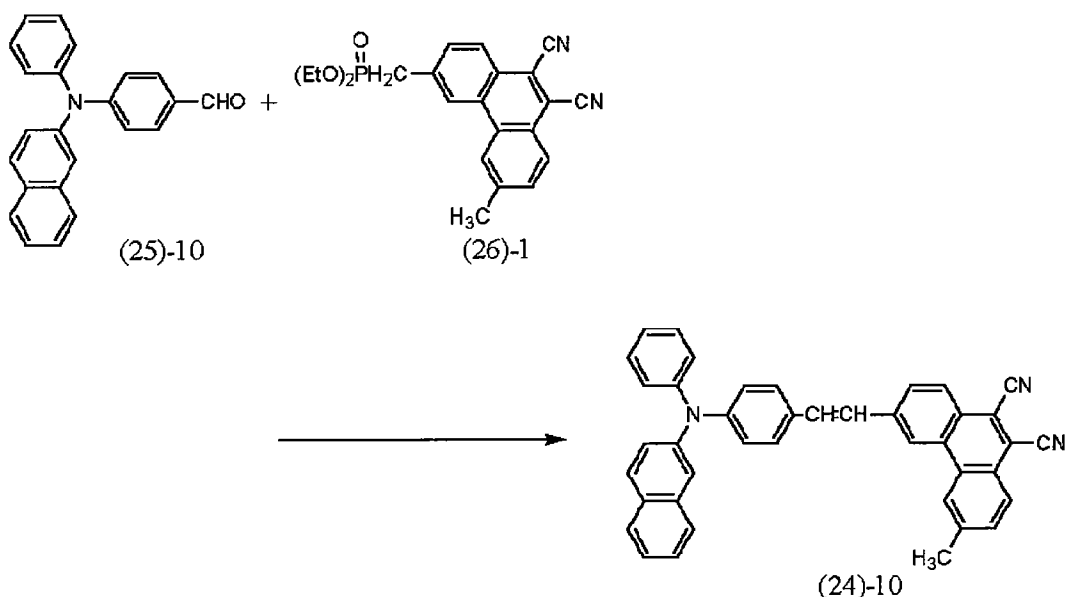
[0082] The silica gel chromatography (Wako gel C-300, toluene) refined, from the toluene-hexane, it recrystallized 4 times and 0.574g of red crystals was obtained. [0083] The specified substance was identified by <sup>1</sup>H NMR and FAB-MS measurement. 69% of yield.

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>) delta (ppm):2.72 (s, 3H), 3.83 (s, 3H), 6.88 (d, 2H), 6.90-7.40 (m, 11H), 7.46 (d, 2H), 7.67 (d, 1H), 8.01 (d, 1H), 8.28 (m, 2H), 8.55 (s, 1H), 8.65 (s, 1H) [0084] Although the melting point was 277 degrees C as a result of the thermal analysis by DSC, the glass transition point was not observed. 459nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were about 690nm. Moreover, the <sup>1</sup>H NMR spectrum was as being shown in drawing 5 .

[0085] Example 6 <example of composition of amino styryl phenanthrene

compound ((24) -10)> [0086]

[Formula 93]



[0087] 0.167g (a mineral oil is entered) (4.17mmol) of sodium hydride is measured in a reaction container. Wash twice by the hexane and anhydrous tetrahydrofuran:anhydrous dimethylformamide =85:15 mixed-solution 10mL is made to suspend. On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind, a Wittig-Horner reagent () (26) -10.500g (1.39mmol) and a 4-[N-phenyl-N-(2-naphthyl)] amino benzaldehyde ((25) -10) 0.494g (1.53mmol) anhydrous tetrahydrofuran : N.N-dimethylformamide =85:15 mixed-solution 90mL is dropped over 15 minutes. It stirred at 0 degree C then for 3 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and after extracting with toluene and washing with saturation brine, it dried on anhydrous sodium sulfate.

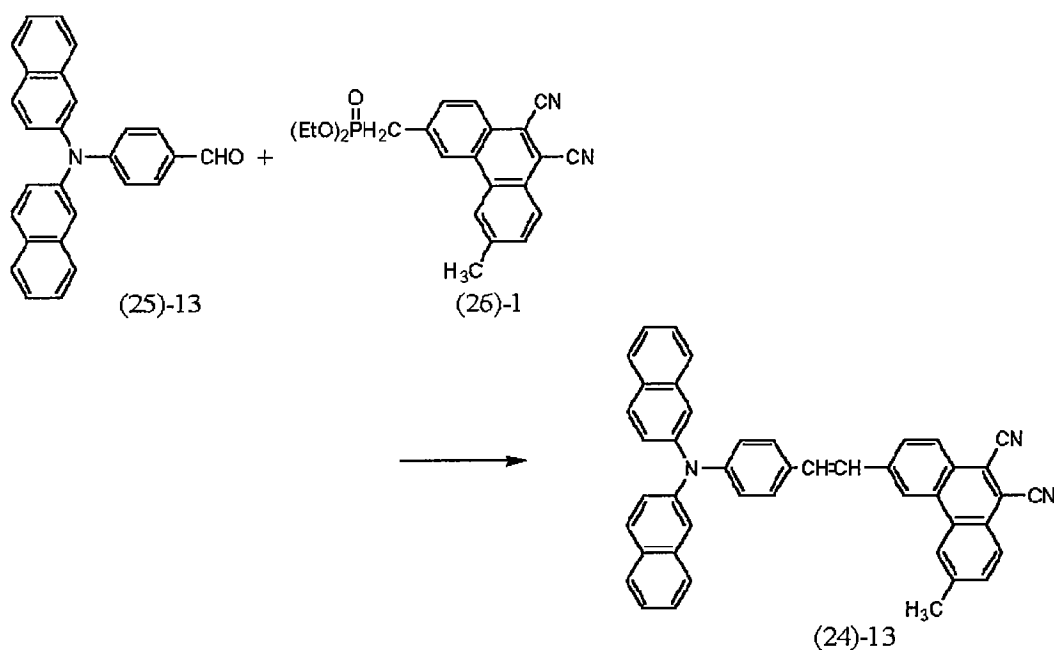


[0088] The silica gel chromatography (Wako gel C-300, toluene:chloroform = 2:1) refined, from the toluene-hexane, it recrystallized 4 times and 0.531g of red crystals was obtained. [0089] The specified substance was identified by <sup>1</sup>H NMR and FAB-MS measurement. 68% of yield.

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>) delta (ppm) : 2.72 (s, 3H), 7.11-7.44 (m, 12H), 7.52 (m, 3H), 7.67 (m, 2H), 7.79 (m, 2H), 8.02 (d, 1H), 8.25 (d, 1H), 8.30 (d, 1H), 8.56 (s, 1H), 8.66 (s, 1H) [0090] As a result of the thermal analysis by DSC, the melting point was 284 degrees C and the glass transition point was 154 degrees C. 454nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 647nm. Moreover, the <sup>1</sup>H NMR spectrum was as being shown in drawing 6 .

[0091] Example 7 <example of composition of amino styryl phenanthrene compound ((24) -13)> [0092]

[Formula 94]



[0093] 0.167g (a mineral oil is entered) (4.17mmol) of sodium hydride is measured in a reaction container. Wash twice by the hexane and anhydrous tetrahydrofuran:anhydrous dimethylformamide =85:15 mixed-solution 10mL is made to suspend. On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind, a Wittig-Horner reagent An anhydrous tetrahydrofuran (0.500g (1.39mmol) and 4-screw [N-(2-naphthyl)] amino benzaldehyde ((25) -13) 0.571g (1.53mmol)) : ((26) -1) N.N-dimethylformamide =85:15 mixed-solution 90mL It was dropped over 15 minutes and stirred at 0 degree C as it is for 2 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and after extracting with toluene and washing with saturation brine, it dried on anhydrous sodium sulfate.

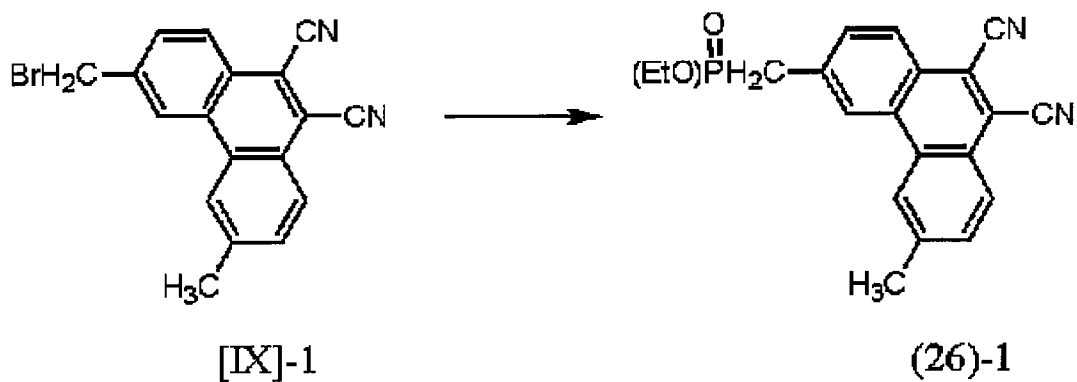
[0094] The silica gel chromatography (Wako gel C-300, toluene:chloroform =

2:1) refined, from the toluene-hexane, it recrystallized 4 times and 0.635g of red crystals was obtained. [0095] The specified substance was identified by  $^1\text{H}$  NMR and FAB-MS measurement. 75% of yield.

$^1\text{H}$  NMR ( $\text{CDCl}_3$ )  $\delta$  (ppm): 2.71 (s, 3H), 7.19 (d, 2H), 7.31-7.45 (m, 7H), 7.51-7.82 (m, 12H), 8.02 (d, 1H), 8.27 (d, 1H), 8.32 (d, 1H), 8.55 (s, 1H), 8.68 (s, 1H) [0096] As a result of the thermal analysis by DSC, the melting point was 317 degrees C and the glass transition point was 193 degrees C. 455nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 639nm. Moreover, the  $^1\text{H}$  NMR spectrum was as being shown in drawing 7 .

[0097] Example 8 <example of composition of phosphonate ((26) -1)> [0098]

[Formula 95]



[0099] 3-(bromomethyl)-6-methyl phenanthrene 9 and 10-JIKARUBO nitril ([IX]-1) 0.860g (2.57mmol) and phosphorous acid triethyl 3.28g (19.8mmol) were

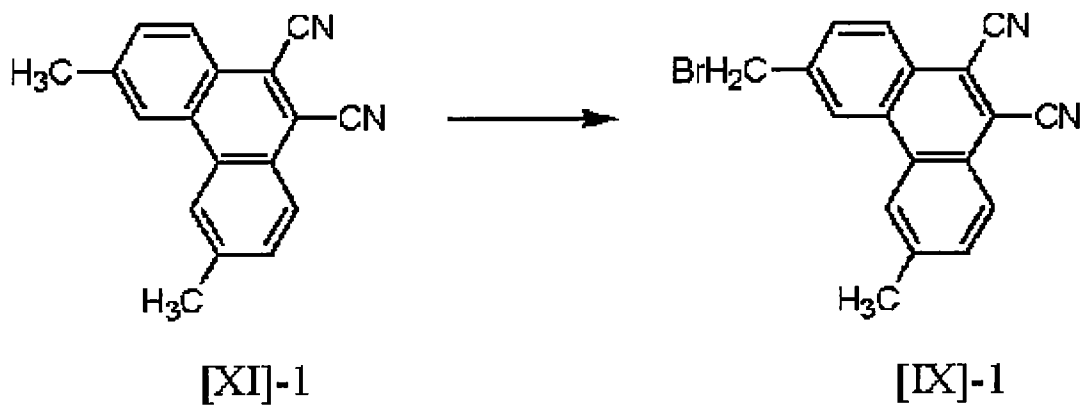
made to suspend in xylene 150mL, it flowed back quietly for 24 hours, and the specified substance was obtained quantitatively.

[0100] The specified substance was identified by <sup>1</sup>H NMR and FAB-MS measurement.

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>) delta (ppm): 1.31 (t, 6H), 2.70 (s, 3H), 3.47 (d, 2H), 4.07 (q, 4H), 7.63 (m, 1H), 7.78 (m, 1H), 8.28 (m, 2H), 8.51 (d, 1H), and a 8.70 (brs, 1H) <sup>1</sup>H NMR spectrum were as being shown in drawing 8 .

[0101] Example 9 <example of composition of 3-(bromomethyl)-6-methyl phenanthrene 9 and 10-JIKARUBO nitril ([IX] -1)> [0102]

[Formula 96]



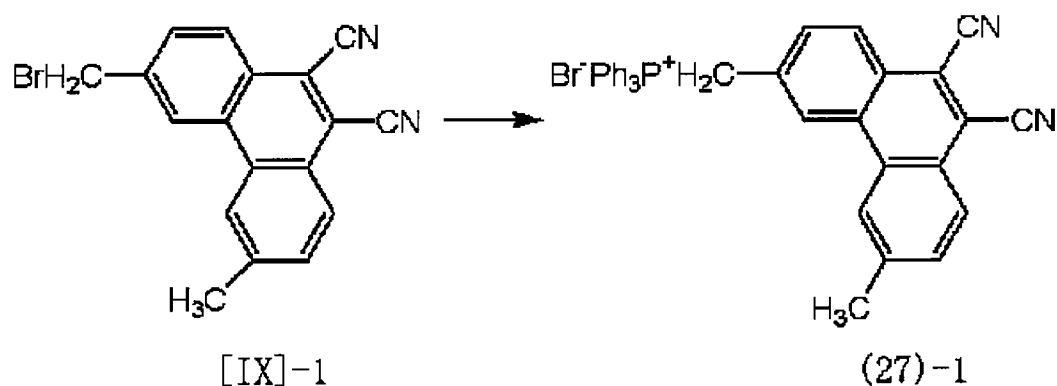
[0103] After dissolving 3, 6-dimethyl phenanthrene -9, and 10-JIKARUBO nitril ([XI] -1) 0.800g (3.12mmol) in chloroform 200mL and performing oxygen degassing through nitrogen, 0.556g (3.12mmol) of N-bromosuccinimide was added, and it flowed back for 6 hours. the precipitate obtained by adding

NBS 0.556g (3.12mmol) furthermore, flowing back for 6 hours, condensing a reaction solution to 50mL(s) and carrying out filtration under reduced pressure -- ethanol -- it often washed by the hexane continuously and 0.860g of specified substance was obtained. [0104] The specified substance was identified by <sup>1</sup>H NMR and FAB-MS measurement. 82% of yield.

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>) delta (ppm): 4.77 (s, 2H), 7.68 (m, 1H), 7.90 (m, 1H), 8.30 (m, 1H), 8.37 (m, 1H), 8.53 (s, 1H), and a 8.73(s, 1H) <sup>1</sup>H NMR spectrum were as being shown in drawing 9 .

[0105] Example 10 <example of composition of phosphonium ((27) -1)> [0106]

[Formula 97]

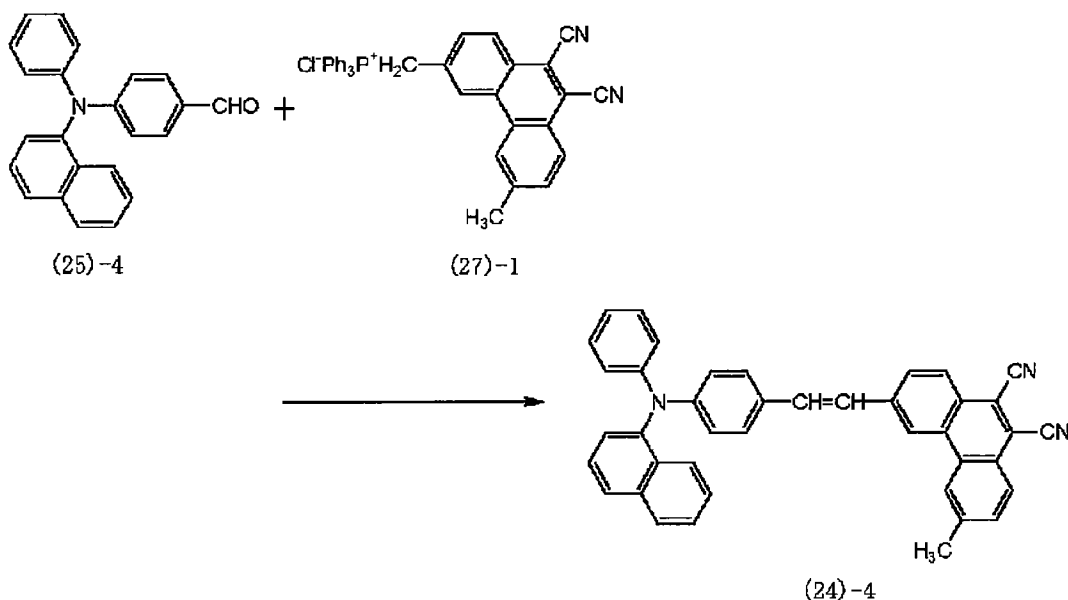


[0107] 3-(bromomethyl)-6-methyl phenanthrene 9 and 10-JIKARUBO nitril ([IX] -1) 0.860g (2.57mmol) and triphenyl phosphine 3.37g (12.9mmol) -- xylene 150ml -- it was made to suspend in inside and flowed back quietly for 24 hours. The reaction solution was condensed in one half, the produced precipitate was

filtered, and the specified substance was obtained quantitatively. 1H The specified substance was identified by NMR and FAB-MS measurement.

[0108] Example 11 <example of composition of amino styryl phenanthrene compound ((24) -4)> [0109]

[Formula 98]



[0110] 0.167g (a mineral oil is entered) (4.17mmol) of sodium hydroxides is measured in a reaction container. Wash twice by the hexane and 10ml of anhydrous tetrahydrofuran:anhydrous dimethylformamide =85:15 mixed solutions is made to suspend. On an ice bath, Under nitrogen-gas-atmosphere mind, a Witting reagent ( ) 0.830g (27-1) (1.39mmol) and a 4-[N-phenyl-N-(1-naphthyl)] amino benzaldehyde ((25) -4) 0.494g (1.53mmol) anhydrous tetrahydrofuran : 90ml of N.N-dimethylformamide =85:15 mixed

solutions is dropped over 15 minutes. It stirred at 0 degree C then for 3 hours.

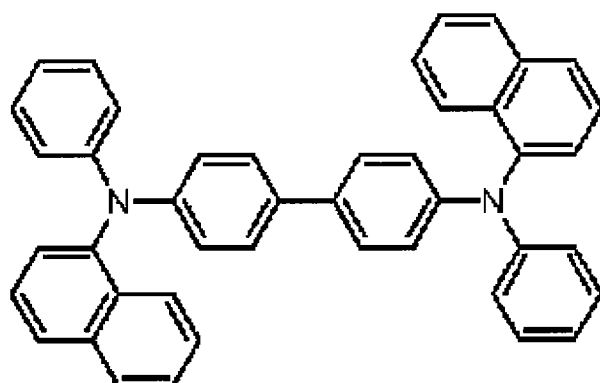
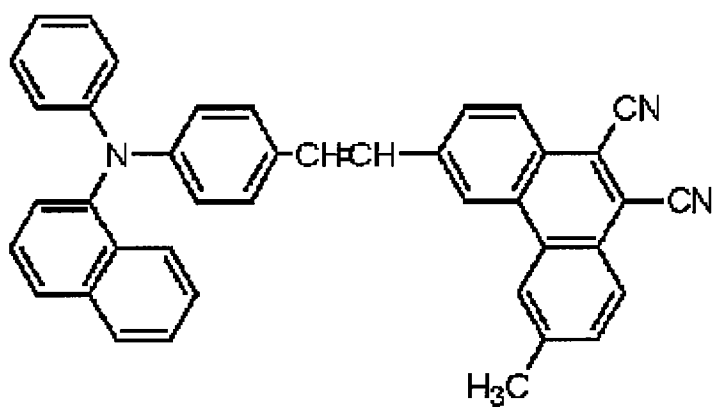
Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and after extracting with toluene and washing with saturation brine, it dried on anhydrous sodium sulfate.

[0111] The silica gel chromatography (Wako gel C-300, toluene:chloroform = 2:1) refined, from the toluene-hexane, it recrystallized 4 times and 0.318g of red crystals was obtained. <sup>1</sup>H By NMR and FAB-MS measurement, the same spectrum as (24)-4 (example 3) compounded by the Witting-Honer reaction was obtained, and the specified substance was identified (41% of yield).

[0112] Example 12 this example is an example which produced single hetero structure transparency mold organic electroluminescence devices for the compound of following structure-expression (24)-4, using an electronic transportability luminous layer and 4, and 4'-screw [N, N'-JI (1-naphthyl)-N, and N'-diphenyl] biphenyl diamine (alpha-NPD) as an electron hole transportation layer.

[0113]

[Formula 99] Structure expression (24) -4 :



Alpha-NPD :

[0114] First, the 30mmx30mm glass substrate with which the anode plate which consists of ITO with a thickness of 100nm was formed on one front face into the vacuum evaporation system was set. The substrate was approached, the metal mask which has two or more 2.0mmx2.0mm unit openings as a vacuum evaporation mask has been arranged, and alpha-NPD which is an electron hole transportation ingredient under the vacuum of  $10^{-4}$  or less Pa was vapor-deposited in thickness of 50nm with the vacuum deposition method. Furthermore, the above-mentioned structure-expression (24)-4 [ 50nm ] were vapor-deposited in contact with the electron hole transportation layer as an



electronic transportability luminescent material. The vacuum evaporation rate was made respectively in 0.2nm/second.

[0115] The cascade screen of Mg and Ag was adopted as a cathode material, and by vacuum evaporation, it formed in the thickness of 50nm (Mg film) and 150nm (Ag film) as vacuum evaporation rate 1nm/a second, and although this also showed drawing 12 by the example 10, it produced \*\*\*\* organic electroluminescence devices.

[0116] Thus, forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of the produced example 10 under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry, it obtained the spectrum which has a luminescence peak near 637nm. The spectroscope which used the photodiode array by the Otsuka electronic company as the detector was used for spectrometry. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, the brightness of 1000 cd/m<sup>2</sup> was obtained by 8V.

[0117] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere mind, component degradation was not observed. Moreover, when energizing a current value uniformly, carrying out continuation luminescence and carrying out forcible

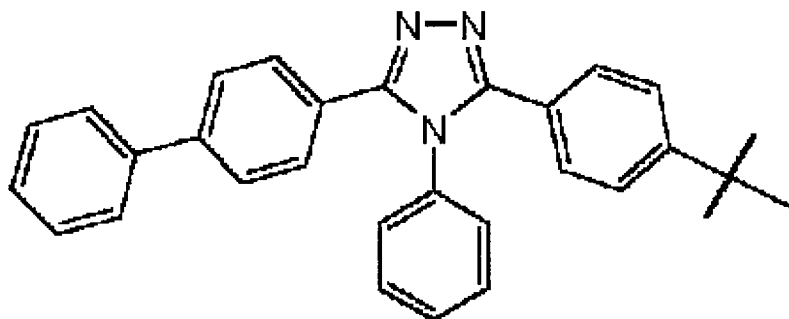
degradation by initial brightness 200 cd/m<sup>2</sup>, it was 900 hours until brightness was halved.

[0118] Example 13 this example said compound of structure-expression (24)-4 A luminous layer, 4 expressed with said structure expression, and 4'-screw [N, N'-JI (1-naphthyl)-N, and N'-diphenyl] biphenyl diamine (alpha-NPD) An electron hole transportation layer, And it is the example which created terrorism structure transparency mold organic electroluminescence devices to double, using the 2-(4-biphenyl)-5-(4-tert-buthylphenyl)-1-phenyls 1 and 3 and 4-triazole (TAZ) which are expressed with the following structure expression as an electron transport layer ingredient.

[0119]

[Formula 100]

TAZ :



[0120] First, the 30mmx30mm glass substrate with which the anode plate which consists of ITO with a thickness of 100nm was formed on one front face into the vacuum evaporation system was set. The substrate was approached, the metal

mask which has two or more 2.0mmx2.0mm unit openings as a vacuum evaporation mask has been arranged, and alpha-NPD which is an electron hole transportation ingredient under the vacuum of  $10^{-4}$  or less Pa was vapor-deposited in thickness of 50nm with the vacuum deposition method. Next, the compound expressed with said structure-expression (24)-4 as a luminescent material was vapor-deposited in thickness of 25nm in contact with the electron hole transportation layer. Furthermore, TAZ as an electronic transportation ingredient was vapor-deposited in thickness of 25nm in contact with the luminous layer. The vacuum evaporation rate was made respectively in 0.2nm/second.

[0121] The cascade screen of Mg and Ag was adopted as a cathode material, and by vacuum evaporation, this was also formed in the thickness of 50nm (Mg film) and 150nm (Ag film) as vacuum evaporation rate 1nm/a second, and produced organic electroluminescence devices as shown in drawing 13 by the example 13.

[0122] Thus, forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of the produced example 13 under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry, it obtained the spectrum which has a luminescence peak near 637nm. The

spectroscope which used the photodiode array by the Otsuka electronic company as the detector was used for spectrometry. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, the brightness of 2000 cd/m<sup>2</sup> was obtained by 8V.

[0123] After creating these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, when energizing a current value uniformly, carrying out continuation luminescence and carrying out forcible degradation by initial brightness 200 cd/m<sup>2</sup>, it was 1100 hours until brightness was halved.

[0124]

[Function and Effect of the Invention] The amino styryl phenanthrene compound of this invention can be effectively used depending on the substituent introduced into the structure as an organic luminescent material which shows strong luminescence of the red from which luminescence maximum wave length differs, it is the matter which has the high melting point, and it excels in electric, thermal, or chemical stability, and it is amorphous and a vitreous state can be formed easily, and also has sublimability and can also form the uniform amorphous film with vacuum deposition etc. while excelling in thermal resistance. Moreover, the compound of this invention can be manufactured by the general and efficient approach through the synthetic intermediate field of this invention.

---

## DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

### [Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] <sup>1</sup>H of the compound by the example 1 of this invention It is an NMR spectrum Fig.

[Drawing 2] <sup>1</sup>H of the compound which this invention twists example 2 It is an NMR spectrum Fig.

[Drawing 3] <sup>1</sup>H of the compound by the example 3 of this invention It is an NMR spectrum Fig.

[Drawing 4] <sup>1</sup>H of the compound by the example 4 of this invention It is an NMR spectrum Fig.

[Drawing 5] <sup>1</sup>H of the compound by the example 5 of this invention It is an NMR spectrum Fig.

[Drawing 6] <sup>1</sup>H of the compound by the example 6 of this invention It is an NMR spectrum Fig.

[Drawing 7] <sup>1</sup>H of the compound by the example 7 of this invention It is an NMR spectrum Fig.

[Drawing 8] <sup>1</sup>H of the compound by the example 8 of this invention It is an NMR

spectrum Fig.

[Drawing 9] <sup>1</sup>H of the compound by the example 9 of this invention It is an NMR spectrum Fig.

[Drawing 10] It is the important section outline sectional view of the organic electroluminescence devices based on this invention.

[Drawing 11] It is the important section outline sectional view of organic electroluminescence devices besides \*\*\*\*.

[Drawing 12] It is the important section outline sectional view of organic electroluminescence devices besides \*\*\*\*.

[Drawing 13] It is the important section outline sectional view of \*\*\*\* and also other organic electroluminescence devices.

[Drawing 14] It is the block diagram of the full color flat-surface display using \*\*\*\* organic electroluminescence devices.

[Description of Notations]

1 [ ... A protective coat, 5, 5a, 5b / ... An organic layer, 6 / ... An electron hole transportation layer, 7 / ... An electron transport layer, 8 / ... A power source, 10 / ... An electron hole transportation layer, 11 / ... A luminous layer, 12 / ... An electron transport layer, 14 / ... A luminance-signal circuit, 15 / ... A control circuit, 20 / ... Luminescence light, A B C, D / ... Organic electroluminescence devices ] ... A substrate, 2 ... A transparent electrode (anode plate), 3 ... Cathode,

